UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
INSTITUTO DE FÍSICA " GLEB WATAGHIN "

Influência das Anisotropias Magnéticas nos Processos de Magnetização de Ligas Amorfas

aluno : Solon Pereira da Cruz Filho
orientadora : Reiko Sato Turtelli

Dissertação para obtenção de
Título de Doutor em Física

Este exemplar corresponde à redação final da tese defendida pelo aluno Solon Pereira da Cruz Filho e aprovada pela comissão julgadora.

27/06/92

R Sato Turtelli

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL

UNIDADE IF
N.º CHAMADA:
T/UNICAMP/D
C889i
V. Ex.
T 16900 M
PROC. 215/92
C | | D | X |
PREÇO Cr$ 20.000,00
DATA 07/07/92
N.º CPD

M

TD/895

CM00028304-3

BANCA

Prof. Dr. Hercílio Rechemberg (IFUSP)

Prof. Dr. Mário Norberto Baibich (IFRGS)

Prof. Dr. Amir Ordacgi Caldera(UNICAMP)

Prof. Dr. Oscar Ferreira de Lima (UNICAMP)

Profa. Dra. Reiko Sato Turtelli (UNICAMP)

Aos meus filhos

Solon, Denis, Thales e Théa

AGRADECIMENTOS

À Reiko, pela dedicação, pelo carinho e pela orientação;

Ao João Paulo e ao Marcelo pelo apoio, o companheirismo e a amizade,

Ao pessoal do LMBT pelo ambiente de trabalho,

A PUC, Porto Alegre pelo apoio finaceiro, e

A CAPES

RESUMO

Foram realizadas medidas de susceptibilidade magnética inicial e de relaxação da permeabilidade magnética inicial ("aftereffect") em uma série de ligas metálicas amorfas de composição nominal $Fe_xCo_{75-x}Si_{15}B_{10}$ ($2 \leq x \leq 40$). Os comportamentos obtidos para as curvas de susceptibilidade em função dos diversos agentes externos aplicados nas amostras (tensão mecânica, campo DC, tratamentos térmicos) são descritos em termos de um modelo fenomenológico desenvolvido para a susceptibilidade por rotação de domínios. Tal modelo leva em consideração diversos termos da energia de anisotropia nos materiais amorfos. Medidas de "aftereffect" confirmam alguns resultados obtidos a partir da interpretação do modelo proposto, indicando as diversas influências das anisotropias nos processos de magnetização. O mesmo procedimento experimental foi utilizado para estudar os processos de magnetetização em fitas de mesma composição ($Fe_{4.6}Co_{70.4}Si_{15}B_{10}$) produzidas com taxas de resfriamento diferentes. Com isto, é possível ter uma idéia da influência do grau de amorficidade inicial na cinética da relaxação estrutural. Além disto, medidas realizadas em fios amorfos indicam os processos de magnetização dominantes nesses materiais, onde a distribuição de anisotropias locais é muito mais definida do que no caso de fitas.

ABSTRACT

Measurements of initial magnetic suscptibility and initial magnetic permeability aftereffect were performed in a set of amorphous metallic ribbons of nominal composition $Fe_xCo_{75-x}Si_{15}B_{10}$ ($2 \leq x \leq 40$). The observed behaviors for the susceptibilitity curves as a function of the external agents applied in the samples (tensile stresses, DC magnetic field, thermal treatments) are described in terms of a phenomenological model developed for the susceptibility by domain rotation. Such model takes in account several terms for the anisotropy energy in amorphous materials. Aftereffect measurements confirm some results obtained from the interpretation of the proposed model, indicating several influences of the anisotropy terms in the magnetization processes. The same experimental procedure was used to study the magnetization processes in ribbons with the same composition ($Fe_{4.6}Co_{70.4}Si_{15}B_{10}$) produced with different quenching rates. It is possible to have an idea about the influence of the initial degree of amorphicity in the structural relaxation kinetics. Besides that, measurements performed in amorphous wires indicate the main magnetization processes in these materials, where the local anisotropies distribution is much more defined than in the ribbon's case.

Conteúdo

1 Introdução **1**

2 Anisotropias Magnéticas **7**

2.1 Energia Magnetocristalina 8

2.1.1 Energia Magnetocristalina nos Amorfos 11

2.2 Energia Magnetoelástica 12

2.2.1 Energia Magnetoelástica nos Amorfos 16

2.3 Energia Magnetostática 22

2.4 Considerações Gerais 24

3 Relaxação Estrutural **27**

3.1 Ordenamento Químico de Curto Alcance (CSRO) 27

3.2 Ordem Topológica de Curto Alcance (TSRO) 31

4 "Aftereffect" da Permeabilidade Magnética **34**

5 Modelo para a Susceptibilidade Inicial **41**

5.1 Efeito da aplicação de tensão na susceptibilidade 45

5.2 Efeito da aplicação de um campo magnético longitudinal DC . 51

5.3 Considerações Gerais 51

6 Métodos Experimentais **58**

6.1 Método de Medida do "Aftereffect" 58

6.2 Medidas de Susceptibilidade Magnética 61

7 Dependência da Susceptibilidade com Tensão e Campo 63

7.1 Efeito de Tratamento Térmico para a amostra $Fe_{4.6}$ 76

8 Influência das Condições de Produção na Evolução da Anisotropia com Tratamento Térmico 80

8.1 Resultados 82

8.2 Discussão 88

9 Decaimento da Indução Magnética em Fios Amorfos 90

9.1 Resultados 93

9.1.1 Fitas Amorfas 93

9.1.2 Fios Amorfos 95

10 Conclusão 98

Capítulo 1

Introdução

As ligas metálicas amorfas tem sido um assunto de curiosidade e fascinação há 25 anos , seguindo o trabalho pioneiro de Paul Duwez [Klement *et al* 1960]. Estes materiais têm frequentemente apresentado fenômenos não esperados. As surpresas começaram a partir de sua descoberta, quando seu comportamento ferromagnético chocou inúmeros magneticistas que acreditavam ser este um comportamento exclusivo dos materiais cristalinos.

Outras propriedades que, surprendentemente, muitas vezes ocorrem juntas em um mesmo material são :

(a) propriedades magnéticas : alta permeabilidade, baixos campos coercivos, baixas perdas, altas ou baixas constantes de magnetostrição, etc.

(b) propriedades mecânicas : alta flexibilidade, alto limite elástico, alta dureza, etc.

(c) outras propriedades : alta resistência à corrosão, alta resistividade elétrica, etc.

Através de combinações destas propriedades, obtem-se materiais que apresentam uma extensa gama de possibilidades de aplicação tecnológica.

Por outro lado, uma maior aplicabilidade tem esbarrado em uma característica, própria dos amorfos obtidos por resfriamento rápido a partir do estado líquido, que é o fenômeno da relaxação estrutural. Através deste fenômeno, o estado metaestável amorfo inicial sofre transformações para estados, ainda metaestáveis, porém de menor energia. Tais transformações são termicamente ativadas e, portanto, tratamentos térmicos (em alguns casos, mesmo em temperatura ambiente) podem alterar as propriedades das ligas amorfas. Se, por um lado, esta característica é uma dificuldade, por outro, ela propicia estudos de diversas propriedades físicas fundamentais.

Inicialmente, o estudo das propriedades físicas e químicas era feito em ligas amorfas em forma de fitas, porém a partir de 1981 este tipo de estudo foi extendido aos fios amorfos. Os fios foram, pela primeira vez, produzidos por Masumoto em 1981 [Masumoto 1981]. Em certos aspectos os fios apresentam vantagens em relação às fitas, como por exemplo : uma geometria mais robusta, portanto pode ser utilizado como reforço mecânico; apresenta biestabilidade magnética , o que possibilita sua utilização como elemento sensor; etc.

Tem sido uma preocupação de nosso laboratório desde 1983, a caracterização magnética das ligas amorfas como produzidas ("as-cast") e a evolução de suas propriedades a partir deste estado. As fitas e os fios utilizados tem sido produzidos por processos "melt-spinning" , onde obtem-se taxas de resfriamento da ordem de 10^6K/s. A amorficidade das ligas tem sido verificada por difração de raios X.

Para a obtenção de informações acerca da estrutura amorfa, a principal técnica utilizada tem sido a medida do "aftereffect" da permeabilidade magnética inicial e os resultados interpretados à luz do modelo desenvolvido por P. Allia e F. Vinai [Allia e Vinai 1982,1986]. Detalhes sobre o modelo serão mostrados no capítulo 3.

O grupo tem se preocupado em estudar o magnetismo de ligas metálicas amorfas e materiais magnéticos doces. Em linhas gerais, podemos citar :

- Estudo sobre a influência das condições de fabricação das fitas amorfas no "aftereffect" da permeabilidade magnética.
- Verificação das teorias de "aftereffect", em particular, a dependência com o quadrado da constante de magnetostrição para ligas amorfas ricas em Fe e em Co.
- Propriedades magnéticas dos ferromagnetos amorfos em função da temperatura (desde 4.2K até a temperatura de Curie)
- Dependência do campo de "pinning" com tratamentos termomagnéticos diversos em ligas de magnetostrição próximas a zero.
- Estudo do desenvolvimento da fase nanocristalina em ligas de FeCuNbSiB.
- Efeitos da aplicação de solicitações externas (como tensão mecânica e campo magnético estático) nas propriedades magnéticas dos amorfos.

Em relação a este último tópico, recentemente foi reportada a dependência da constante de magnetostrição (λ_s) com a tensão [Herzer 1986, Barandiarán *et al* 1987, Siemko *et al* 1987, Kraus 1989]. A partir da consideração de uma anisotropia uniaxial, eles tem chegado à conclusão de que λ_s é uma função linear da tensão aplicada, com uma constante de proporcionalidade negativa da ordem de -10^{-10} 1/MPa. Esta dependência tem sido observada através de métodos indiretos de determinação de λ_s, entre eles, por medidas da susceptibilidade em função da tensão em amostras de $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$ com λ_s levemente positivo. O valor de λ_s tem sido obtido através da derivada do inverso da susceptibilidade em relação à tensão.

Estas observações nos motivaram a estudar, através de medidas de susceptibilidade, a dependência de λ_s vs. σ. Resultados preliminares indicaram uma inversão de sinal de λ_s mesmo em amostras com λ_s negativo, o que não era esperado. Desta forma, passamos a questionar esta mudança de sinal ou, pelo menos, sua determinação através da derivada da susceptibilidade.

Como este método está baseado na uniaxialidade da anisotropia, resolvemos reconsiderar esta premissa.

A anisopropia magnética é um dos fatores que caracterizam as ligas amorfas, tem grande influência sobre a maioria de suas propriedades e é facilmente modificável por relaxação estrutural. Ela é normalmente tomada como uniaxial e associada à :

i. anisotropia de forma - determinada pela geometria das fitas e condições de superfície.

ii. anisotropia de um-íon - proveniente do campo anisotrópico a que cada átomo está sujeito.

iii. anisotropia magnetostritiva - devida às tensões internas

iv. anisotropia estrutural - causada pelo ordenamento de pares de átomos magnéticos

Os pontos (iii) e (iv) tem sido tomados como os mais importantes no caso de sistemas metal de transição-metalóides. A anisotropia de forma não tem sido considerada e a anisotropia de um-íon é esperada ser nula quando tomada a média no volume da amostra.

A proporcionalidade entre a constante de anisotropia $K\mu$ e a constante de magnetostrição λ_s observado por O'Handley [O'Handley 1976] em amostras ricas em Fe é vista como uma evidência de que a anisotropia magnetostritiva é predominante neste caso. Esta evidência recebeu confirmação em [Egami e Flanders 1976] para amostras "as cast". Por outro lado, Kohmoto [Kohmoto *et al* 1980] encontrou, para as mesmas amostras uma dependência de K_μ com M_s^2 que concorda com outro mecanismo : a ordem direcional (iv).

A redução das tensões internas por recozimento reduzem a anisotropia magnetostritiva, entretanto Morita [Morita *et al* 1979(a)] não observou tal fato em amostras de $(Fe\text{- }Co)_{78}Si_{10}B_{12}$. Ele mostrou que as amostras "as cast" tinham uma anisotropia cuja dependência com a concentração e com a temperatura eram similares àquelas de uma amostra laminada [Morita *et al* 1980]. O mesmo foi observado para $(Fe\text{-}Ni)_{78}Si_{10}B_{12}$ [Morita e Obi 1980] e

$Co_{70.9}Fe_{4.7}Si_{15}B_{10}$ [Morita *et al* 1979(b)]. Isto mostra a importância da ordem direcional nestes casos.

A razão das controvérsias nestas conclusões pode ser atribuida ao fato de a anisotropia nos amorfos ser altamente sensível às mudanças estruturais que por sua vez são afetadas pelas condições de produção e os tratamentos subsequentes, e por outro lado, porque a anisotropia tem sido tomada como uniaxial.

Neste trabalho foi desenvolvido um modelo para a susceptibilidade mag nética por rotação da magnetização dentro dos domínios, levando em consideração diversas contribuições para a anisotropia efetiva. A influência das anisotropias residuais e daquelas impostas às amostras por tensão mecânica (σ) e campo magnético DC longitudinal (H_{dc}) sobre os processos de magnetização, é verificada em amostras da família $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$. Estes resultados são mostrados no capítulo 7.

As conclusões relativas aos processos de magnetização, obtidas através das medidas de susceptibilidade inicial, foram corroboradas por medidas da relaxação da permeabilidade magnética inicial ("aftereffect"). Também foi feita a análise das anisotropias induzidas para tempos longos de tratamento térmico com e sem campo magnético aplicado, através de medidas de "aftereffect" em três amostras de mesma composição $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$ obtidas com diferentes taxas de resfriamento. O estudo foi extendido também aos fios amorfos, por estes apresentarem anisotropia residual magnetoelástica bem definida. Utilizamos fios com diferentes graus de anisotropia residual.

No capítulo 2 mostraremos as diversas contribuições para a anisotropia efetiva, a partir dos conceitos desenvolvidos para os materiais cristalinos e simultaneamente , como tais conceitos têm sido utilizados no caso dos amorfos.

No capítulo 3 são apresentados os processos de relaxação estrutural segundo os conceitos desenvolvidos por Egami.

No capítulo 4 apresentamos o modelo de Allia e Vinai para o fenômeno de relaxação da permeabilidade magnética inicial ("aftereffect") que é baseado

nos conceitos introduzidos no capítulo 3.

O modelo para a susceptibilidade magnética aqui desenvolvido está mostrado no capítulo 5.

As técnicas de medida que utilizamos são descritas no capítulo 6.

A dependência da susceptibilidade de fitas amorfas da família $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$ com tensão mecânica e campo magnético DC longitudinal, é mostrada no capítulo 7.

No capítulo 8, é mostrada a evolução da anisotropia com tratamento térmico de amostras da liga $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$, produzidas com diferentes taxas de refriamento.

O estudo dos decaimentos da permeabilidade magnética em fios amorfos de base Fe ($\lambda = 35 \times 10^{-6}$), e de base Co ($\lambda = 2,1 \times 10^{-7}$), é mostrado no capítulo 9.

Por fim, no capítulo 10, são mostradas as conclusões finais e algumas sugestões para trabalhos futuros.

Capítulo 2

Anisotropias Magnéticas

Em muitos aspectos as ligas amorfas são melhores do que os materiais cristalinos e, tratamentos térmicos adequados, podem melhorar ainda mais suas propriedades. Com o objetivo de direcionar os tratamentos que visam aprimorar as qualidades das ligas amorfas é necessário conhecermos suas características iniciais (sem tratamento) e, como cada agente externo atua sobre elas. O objetivo de nosso trabalho é caracterizar as anisotropias iniciais e estudar sua influência sobre os mecanismos de magnetização em ligas amorfas.

A anisotropia magnética é um dos fatores iniciais facilmente modificáveis por tratamentos com campo magnético ou tensão mecânica. Após convenientes tratamentos a anisotropia obtida é bem definida, apresentando um caráter uniaxial, entretanto as condições do tratamento adequado dependem das características iniciais da anisotropia . Esta anisotropia, como no caso dos cristais, tem diversas origens.

Iniciaremos a análise para os materiais monocristalinos, que é o caso mais simples, e simultaneamente veremos como estes conceitos têm sido extendidos para o caso de materiais amosrfos.

As anisotropias dos materiais magnéticos cristalinos são facilmente verificáveis através de uma experiência simples : para um monocristal esférico

obtem-se curvas de magnetização para diferentes direções. As diferenças observadas de uma direção para outra são características do cristal utilizado e estão relacionadas com as direções cristalográficas do material. No Co, por exemplo, 100 Oe são suficientes para magnetizá-lo segundo o eixo c até a saturação, mas, em qualquer direção perpendicular a esta, serão necessários pelo menos 2000 Oe para a saturação. Isto evidencia o fato de existirem direções preferenciais dentro de um cristal, segundo as quais êle é magnetizado com maior facilidade. A estas direções dá-se o nome de "direções de fácil magnetização" (dfm). Apesar de os efeitos da anisotropia serem tão facilmente observáveis, a sua interpretação teórica ainda é um ponto não completamente elucidado. Diversos modelos existem, todos baseados na interação do campo cristalino com os momentos magnéticos atômicos, via acoplamento "spin- órbita", mas com tratamentos e resultados diferentes. Não entraremos em consideração sobre tais mecanismos microscópicos e sim, faremos uma abordagem fenomenológica.

A existência de direções de fácil magnetização em um policristal ou um material amorfo mostra que a energia magnética total do sistema tem componentes com dependência direcional.

Entre os termos com dependência direcional, podemos identificar : a energia magnetocristalina, função da estrutura cristalina do material; a energia magnetoelástica, função das tensões internas e externas e a energia magnetostática, função da existência ou não de cargas magnéticas nas descontinuidades do material. A seguir analisaremos cada contribuição separadamente.

2.1 Energia Magnetocristalina

Dada a forma da interação dos momentos magnéticos com um campo externo e, conhecida a estrutura do cristal, podemos descrever esta energia de anisotropia em termos do comportamento da energia livre do sistema (F) em função dos ângulos entre a magnetização e as direções cristalográficas. Sejam α_1, α_2 e α_3 os cossenos diretores da magnetização. F deverá ser

função destes cossenos, bem como, invariante frente às operações de simetria do cristal.

No caso mais simples, que é o de um cristal cúbico, F deve ser necessariamente uma função par dos α_i com pesos idênticos. A primeira combinação de potências pares dos α_i é $(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)$, entretanto, este termo é irrelevante, tendo em vista que seu valor independe de direção. As combinações de quarto grau podem ser de dois tipos :

$$\left(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4\right) \text{ e } \left(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2\right)$$

que estão relacionadas entre si da seguinte maneira :

$$\left(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4\right) + 2\left(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2\right) = \left(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2\right)^2 = 1$$

e portanto não são independentes.

Da mesma forma, as combinações do sexto grau não são independentes entre si, o que nos permite escrever, até sexto grau, a energia livre na forma :

$$F = K_1\left(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2\right) + K_2\left(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2\right)$$

onde K_1 e K_2 são as constantes de anisotropia magnetocristalina.
Analisando esta expressão, vemos que:

- considerando somente o termo de quarto grau, teremos duas possibilidades para a direção em que esta energia é mínima :
  - (a) Para $K_1 < 0$ temos um mínimo em [111]
  - (b) Para $K_1 > 0$ o mínimo será em [100]
- considerando também o termo de sexto grau, aparece mais uma possibilidade, desde que K_1 seja negativo e pequeno quando comparado com K_2 . Neste caso, a direção [110] pode ser uma dfm.

A energia livre, de modo geral, tem sido aproximada para:

$\boxed{F = K \sin^2\theta}$ ou $\boxed{F = -K' \cos^2\theta}$

com uma única constante magnetocristalina K(ou K') e onde θ é o ângulo entre a magnetização e a dfm. Esta energia é mínima quando a magnetização estiver ao longo da dfm.

No caso de pequenos afastamentos da magnetização em relação à dfm podemos escrever, de forma geral :

$$F = a + \frac{b}{2}\varepsilon^2$$

onde ε é o ângulo de afastamento

Para cristais hexagonais :

$b = 2K_1$ se o eixo c for a dfm

Para cristais cúbicos :

se $K_1 < 0$ teremos $b = -\frac{4}{3}K_1$ e [111] como dfm
se $K_1 > 0$ $b = 2K_1$ e [100] será a dfm

Podemos ainda entender a anisotropia magnetocristalina como um campo $\mathbf{H}_a$ (campo de anisotropia efetivo) dirigido segundo a dfm. Sendo $\mathbf{M}_s$ a magnetização de saturação, a energia magnética correspondente será :

$$F = -\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{H}_a = -M_s H_a \cos\varepsilon = -M_s H_a \left(1 - \frac{\varepsilon^2}{2}\right)$$

que comparada com a expressão anterior nos dá :

$$H_a = \frac{b}{M_s}$$

A vantagem de expressar a energia de anisotropia em unidades de campo é que ela fica mais facilmente comparável com grandezas experimentais.

No caso do Fe, um valor típico de K_1 é 46×10^4 erg/cm^3 o que corresponde a um campo de anisotropia de $H_a = 2K_1/M_s = 540$Oe.

2.1.1 Energia Magnetocristalina nos Amorfos

No caso dos amorfos, devido à falta de ordem de longo alcance, em princípio, a energia magnetocristalina não poderia ser definida, entretanto considerando a ordem de curto alcance, é possível defini-la localmente [O'Handley e Grant 1985]. O material amorfo é considerado como constituido de pequenas unidades estruturais, com extensão espacial da ordem de 10 a 20 $\AA$ (basicamente um átomo e seus vizinhos mais próximos), como se fosse um material policristalino com grãos muito pequenos.

No caso de ligas de Co, considera-se as unidades estruturais como hexagonais e, portanto, fortemente anisotrópicas, com uma bem definida dfm, variando aleatoriamente em orientação, de uma unidade para outra.

A energia de anisotropia cristalina neste caso é dada por:

$$\phi_{an} = \mathrm{K}^{\mathrm{local}} \gamma_i \gamma_j$$

onde γ_i e γ_j são os cossenos diretores em relação a um sistema de coordenadas local e $\mathrm{K}^{\mathrm{local}}$ é o tensor de anisotropia local, definido por cinco parâmetros independentes, característicos dos materiais hexagonais.

As unidades estruturais são tomadas como idênticas, em primeira aproximação, com os eixos do sistema de referência local aleatoriamente distribuidos.

O efeito global destas anisotropias localizadas é descrito por funções de distribuição $\mathrm{P}(\cos\theta, \phi)$ onde θ e ϕ caracterizam as orientações dos eixos locais com respeito a um sistema de coordenadas global. Funções de distribuição convenientes junto com efeitos de não linearidade da dependência dos tensores locais com as deformações, são necessários para descrever o comportamento das anisotropias induzidas sob a ação de agentes externos.

2.2 Energia Magnetoelástica

Quando um cristal cúbico, ferromagnético, é resfriado desde uma temperatura acima da temperatura de Curie, verifica-se o aparecimento de uma deformação de sua estrutura. Tal deformação está associada ao acoplamento anisotrópico entre os momentos magnéticos de átomos vizinhos. A simetria de um domínio que tenha como dfm um eixo quaternário não será, agora, maior do que tetragonal. Os eixos ternários não serão mais eixos de simetria. Na verdade, esta deformação magnética espontânea é pequena, sendo que a razão de tetragonalidade é da ordem de 10^{-5} .

De modo análogo, a magnetostrição é um efeito que consiste em deformações provocadas pela aplicação de um campo externo. Um cristal cúbico, abaixo da temperatura de Curie e na ausência de campo magnético, permanece macroscopicamente cúbico por efeito de compensações, pois diferentes domínios estarão deformados segundo as três direções dos eixos quaternários. Com a aplicação de um campo externo, que leve o material à saturação, os domínios estarão magnetizados paralelamente ao campo e a deformação do cristal fica evidenciada.

Como a energia de interação entre átomos vizinhos depende da direção de seus momentos magnéticos, a distância de equilíbrio entre os dois, também dependerá. Esta é a origem da magnetostrição, que, fenomenologicamente pode ser tratada do modo como se segue.

A partir da energia de acoplamento entre dois átomos vizinhos, vamos calcular a energia magnetocristalina de uma rede deformada. O termo em primeira ordem em relação às deformações nos dará a energia magnetoelástica.

Supondo a interação entre átomos vizinhos A e B dada por :

$$W = \frac{1}{2}\sum_{A,B}\omega_{A,B}(\alpha, r)$$

onde ω é função da distância r entre os átomos e do ângulo θ que r faz com a dfm (caracterizada pelo ângulo α) de modo geral temos :

$$\omega_{A,B}(\boldsymbol{\alpha}, \boldsymbol{r}) = u_1(r)P_2(\cos\theta) + u_2(r)P_4(\cos\theta)$$

onde P_2 e P_4 são polinômios de Legendre e a dependência radial está contida em $u_1(r)$ e $u_2(r)$.

A energia magnetoelástica é obtida de :

$$F_{mel} = \frac{1}{2}\sum_{A,B}\delta\omega_{A,B}$$

e pode ser escrita na forma :

$$\begin{aligned} F_{mel} &= B_1\left(\varepsilon_{11}\alpha_1^2 + \varepsilon_{22}\alpha_2^2 + \varepsilon_{33}\alpha_3^2\right) + \\ &\quad 2B_2\left(\varepsilon_{12}\alpha_1\alpha_2 + \varepsilon_{23}\alpha_2\alpha_3 + \varepsilon_{31}\alpha_3\alpha_1\right) + \\ &\quad B_3\left(\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}\right) \end{aligned}$$

em primeira ordem nas deformações ε_{ij} e onde os B_i são as constantes magnetoelásticas.

A energia livre total de um cristal deformado é a soma da energia magnetoelástica e da energia elástica, que para um cristal cúbico é :

$$\begin{aligned} F_{el} &= \frac{1}{2}C_{11}\left(\varepsilon_{11}^2 + \varepsilon_{22}^2 + \varepsilon_{33}^2\right) + \frac{1}{2}C_{44}\left(\varepsilon_{12}^2 + \varepsilon_{23}^2 + \varepsilon_{31}^2\right) + \\ &\quad C_{12}\left(\varepsilon_{11}\varepsilon_{22} + \varepsilon_{22}\varepsilon_{33} + \varepsilon_{33}\varepsilon_{11}\right) \end{aligned}$$

onde C_{11}, C_{44} e C_{12} são as constantes elásticas.

Minimizando a energia livre, determina-se as deformações espontâneas, sem tensões ou campos externos. Em primeiro lugar, aparece uma deformação isotrópica que pouco contribui para a variação dimensional:

$$\Delta = \varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33} = \frac{-B_1 + 3B_3}{C_{11} + 2C_{12}}$$

Além deste termo, temos as contribuições mais significativas para a magnetostrição, ou seja, aquelas dependentes da dfm :

$$\varepsilon_{ii} = \frac{-B_1 \alpha_i^2}{C_{11} - C_{12}} \qquad \varepsilon_{ij} = \frac{2B_2 \alpha_i \alpha_j}{C_{44}}$$

As constantes de magnetostrição habitualmente utilizadas são definidas da seguinte maneira: toma-se uma barra monocristalina com seu eixo ao longo da direção [100] , magnetizada à saturação no mesmo sentido e calcula-se a variação relativa do comprimento, quando comparada com uma barra equivalente, porém policristalina.

Encontra-se :

$$\left(\frac{\delta \ell}{\ell}\right)_{100} = \lambda_{100} = \frac{-2B_1}{3(C_{11} - C_{12})} \tag{2.1}$$

Se a direção do eixo e da saturação for [111] teremos :

$$\left(\frac{\delta \ell}{\ell}\right)_{111} = \lambda_{111} = \frac{B_2}{3C_{44}} \tag{2.2}$$

No caso de uma amostra policristalina, compara-se as deformações entre o estado desmagnetizado estatisticamente e o estado magnetizado à saturação na direção do campo. Neste caso teremos :

$$\frac{\delta \ell}{\ell} = \lambda_s = \frac{3}{2}\left(3\left(\alpha_i^4\right) - \frac{1}{3}\right)\lambda_{100} + 9\left(\alpha_i^4\right)\lambda_{111}$$

Até aqui, consideramos as tensões magnetoelásticas como agentes causadores das deformações. Passaremos a considerar o efeito de tensões externas aplicadas sobre a amostra.

Assim como uma variação da magnetização provoca uma deformação em um cristal ferromagnético, inversamente, uma tensão mecânica dá origem a uma variação da magnetização. Um cristal sujeito a tensões (σ_{ij}) apresenta duas componentes de deformação : uma devida à magnetostrição e outra, uma deformação elástica $\varepsilon_{ij}^{(\sigma)}$ tal que :

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}^{(\lambda)} + \varepsilon_{ij}^{(\sigma)}$$

onde:

$$\varepsilon_{ii}^{(\lambda)} = \frac{-B_1\alpha_i^2}{C_{11}-C_{12}} \qquad \text{e} \qquad \varepsilon_{ij}^{(\lambda)} = \frac{B_2\alpha_i\alpha_j}{2C_{44}}$$

a componente elástica é obtida das fórmulas usuais da teoria da elasticidade :

$$\varepsilon_{ii}^{(\sigma)} = \frac{\sigma_{ii}}{C_{11}-C_{12}} - \frac{C_{12}\left(\sigma_{11}+\sigma_{22}+\sigma_{33}\right)}{\left(C_{11}C_{12}\right)\left(C_{11}+2C_{12}\right)}$$

e

$$\varepsilon_{ij}^{(\sigma)} = \frac{\sigma_{ij}}{2C_{44}}$$

A energia livre total deste cristal será composta de três termos :energia de anisotropia magnetocristalina, energia magnetoelástica e energia elástica.

$$\begin{aligned} F &= F_\alpha + F_{mel} + F_{el} \\ &= K_1\left(\alpha_1^2\alpha_2^2+\alpha_2^2\alpha_3^2+\alpha_3^2\alpha_1^2\right) + B_1\left(\varepsilon_{11}\alpha_1^2+\varepsilon_{22}\alpha_2^2+\varepsilon_{33}\alpha_3^2\right) + \\ &\quad 2B_2\left(\varepsilon_{12}\alpha_1\alpha_2+\varepsilon_{23}\alpha_2\alpha_3+\varepsilon_{31}\alpha_3\alpha_1\right) + B_3\left(\varepsilon_{11}+\varepsilon_{22}+\varepsilon_{33}\right) + \\ &\quad \frac{1}{2}C_{11}\left(\varepsilon_{11}^2+\varepsilon_{22}^2+\varepsilon_{33}^2\right) + \frac{1}{2}C_{44}\left(\varepsilon_{12}^2+\varepsilon_{23}^2+\varepsilon_{31}^2\right) + \\ &\quad C_{12}\left(\varepsilon_{11}\varepsilon_{22}+\varepsilon_{22}\varepsilon_{33}+\varepsilon_{33}\varepsilon_{11}\right) \end{aligned}$$

onde, usando-se as relações anteriores para as deformações em função das tensões e dos B_i em termos de 2.1 e 2.2 e mantendo-se somente os termos que dependem da direção da magnetização teremos :

$$\begin{aligned} F &= \left[K_1 + \frac{9}{4}\left(\left(C_{11}-C_{12}\right)\lambda_{100}^2 - 2C_{44}\lambda_{111}^2\right)\right] \cdot \\ &\quad \left(\alpha_1^2\alpha_2^2+\alpha_2^2\alpha_3^2+\alpha_3^2\alpha_1^2\right) + \\ &\quad -\frac{3}{2}\lambda_{100}\left(\sigma_{11}\alpha_1^2+\sigma_{22}\alpha_2^2+\sigma_{33}\alpha_3^2\right) + \\ &\quad -\frac{3}{2}\lambda_{111}\left(2\sigma_{12}\alpha_1\alpha_2+2\sigma_{23}\alpha_2\alpha_3+2\sigma_{31}\alpha_3\alpha_1\right) \end{aligned}$$

Nota-se, no primeiro termo, a contribuição da magnetostrição para a energia de anisotropia cristalina. O outro termo, linear em relação à tensão, pode ser analisado de forma mais prática, fazendo-se algumas aproximações : vamos supor a aplicação de uma tensão σ identificada pelos cossenos diretores γ_i e γ_j, e uma magnetostrição isotrópica, isto é :

$$\lambda_{100} = \lambda_{111} = \lambda$$

A expressão da energia magnetoelástica fica :

$$\begin{aligned} F_\sigma &= -\frac{3}{2}\lambda\sigma\left(\alpha_1^2\gamma_1^2 + \alpha_2^2\gamma_2^2 + \alpha_3^2\gamma_3^2\right) + \\ &\quad -\frac{3}{2}\lambda\sigma\left(2\alpha_1\alpha_2\gamma_1\gamma_2 + 2\alpha_3\alpha_1\gamma_3\gamma_1\right) \end{aligned}$$

ou, simplificando temos :

$$\boxed{F_\sigma = -\tfrac{3}{2}\lambda\sigma\cos^2\phi}$$

onde ϕ é o ângulo entre a magnetização e a direção da tensão. Por esta expressão vemos que, para $\lambda > 0$ a aplicação de tração faz com que a energia total do sistema fique reduzida na direção da tração. Por outro lado , se $\lambda < 0$ o plano perpendicular à tração é que será favorecido. Isto significa que, nos materiais onde este termo é significativo, a direção de fácil magnetização será determinada pelas tensões internas. No Ni, por exemplo, uma tensão de σ= 17 Kg/mm^2 é suficiente para que a energia magnetoelástica seja comparável à energia magnetocristalina, enquanto que no Fe, a tensão necessária para que isto aconteça é de 170 Kg/mm^2 .

2.2.1 Energia Magnetoelástica nos Amorfos

Nos amorfos, a anisotropia magnética apresenta forte contribuição devida à energia magnetoelástica [Egami *et al* 1980, Egami e Srolovitz 1982] , [Allia e Vinai 1982,1986]. A expressão :

$$F_\sigma = -\frac{3}{2}\lambda\sigma\cos^2\phi$$

desenvolvida para policristais, também tem sido utilizada para os amorfos. Neste caso, ela descreve a anisotropia magnetoelástica a nível local ou, nos dá a anisotropia magnética total, nos casos em que fique definida uma uniaxialidade (amostras sob tensão uniaxial ou tratadas para definir uma anisotropia). Esta contribuição para a anisotropia magnética, de modo geral, é atribuida ao acoplamento entre as tensões locais existentes no material ou a ele imposto e a magnetização. Tais acoplamentos variam de ponto para ponto dentro do material e, em princípio, definem direções locais de fácil magnetização, aleatoriamente orientadas.

Claramente, na literatura, existem duas interpretações quanto às unidades responsáveis pela anisotropia magnetoelástica local :

1. A própria amorficidade é descrita por uma distribuição estatística de tensões a nível atômico e os coeficientes de simetria local [Egami *et al* 1980, Egami e Srolovitz 1982]. Nesta visão as unidades de anisotropia são flutuações localizadas na pressão hidrostática e nas tensões de cisalhamento, como veremos a seguir :

   Consideremos um sistema de partículas que interagem através de um potencial de força central (ϕ) de dois corpos. A energia deste sistema será dada por :

   $$E = \frac{1}{2}\sum_{i,j}\phi(r_{ij})$$

   Introduzindo o deslocamento de cada átomo de modo que a separação inicial r_{ij} (onde i e j indicam vizinhos mais próximos) , torne-se r'_{ij}, elas estarão conectadas pelo tensor de deformação local :

   $$r'_{ij} = (1 + \varepsilon_{ij})\, r_{ij}$$

Até segunda ordem nas deformações a variação na energia total será :

$$\begin{aligned}\Delta \mathrm{E} &= \frac{1}{2}\sum_{i,j}\left(\frac{1}{r_{ij}}\cdot\frac{d\phi}{dr_{ij}}\right)\sum_{a,b} r_{ij}^{a} r_{ij}^{b}\varepsilon_{ij}^{ab} + \\ &\frac{1}{4}\sum_{i,j}\left(\frac{1}{r_{ij}^{2}}\frac{d^{2}\phi}{dr_{ij}^{2}} - \frac{1}{r_{ij}^{3}}\frac{d\phi}{dr_{ij}}\right)\sum_{abcd} r_{ij}^{a} r_{ij}^{b} r_{ij}^{c} r_{ij}^{d}\varepsilon_{ij}^{ab}\varepsilon_{ij}^{cd} + \\ &\frac{1}{4}\sum_{ij}\left(\frac{1}{r_{ij}}\cdot\frac{d\phi}{dr_{ij}}\right)\sum_{abc} r_{ij}^{b} r_{ij}^{c}\varepsilon_{ij}^{ab}\varepsilon_{ij}^{ac}\end{aligned}$$

a, b, c, d representam componentes cartesianas.

No caso de deformação homogênea esta equação define as tensões a nível atômico. As constantes elásticas atômicas sào definidas por :

$$\Delta \mathrm{E} = \sum_{i}\sum_{a,b} \mathrm{v}_i \sigma_i^{ab}\varepsilon^{ab} + \frac{1}{2}\sum_{i}\sum_{a,b,c,d} \mathrm{v}_i \mathrm{c}_i^{abcd}\varepsilon^{ab}\varepsilon^{cd}$$

onde v_i é o volume do iésimo átomo e :

$$\sigma_i^{ab} = \frac{1}{2\mathrm{v}_i}\sum_{j}\frac{1}{r_{ij}}\frac{d\phi}{dr_{ij}} r_{ij}^{a} r_{ij}^{b}$$

e

$$\begin{aligned}\mathrm{c}_i^{abcd} &= \frac{1}{2\mathrm{v}_i}\sum_{j}\left[\left(\frac{1}{r_{ij}^{2}}\frac{d^{2}\phi}{dr_{ij}^{2}} - \frac{1}{r_{ij}^{3}}\frac{d\phi}{dr_{ij}}\right)\cdot r_{ij}^{a} r_{ij}^{b} r_{ij}^{c} r_{ij}^{d} + \right. \\ &\left. + \frac{1}{r_{ij}}\frac{d\phi}{dr_{ij}} r_{ij}^{b} r_{ij}^{d}\delta_{ac}\right]\end{aligned}$$

Uma vez que os amorfos são, em princípio, macroscopicamente isotrópicos, é mais conveniente adotar uma representação que diagonalize a energia elástica para simetria esférica. Isto é feito usando-se combinações lineares das tensões e deformações cartesianas que são equivalentes aos harmônicos esféricos Y_{ℓ}^{m} :

$$\sigma_i^{\ell,m} = \frac{1}{2v_i} \sum_j r_{ij} \frac{d\phi}{dr_{ij}} \cdot Y_\ell^m \left(\frac{\boldsymbol{r}_{ij}}{r_{ij}} \right)$$

ou, mais explicitamente :

$$\begin{aligned}
\sigma_\alpha &= \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1}{2}} (\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3) \\
\sigma_{\gamma_1} &= \left(\frac{2}{3}\right)^{\frac{1}{2}} \left[\sigma_3 - \frac{1}{2}(\sigma_1 + \sigma_2)\right] \\
\sigma_{\gamma_2} &= \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}} (\sigma_1 - \sigma_2) \\
\sigma_{\varepsilon_1} &= \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}} \sigma_4 \ , \ \sigma_{\varepsilon_2} = \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}} \sigma_5 \ , \ \sigma_{\varepsilon_3} = \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}} \sigma_6 \\
\varepsilon_\alpha &= \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1}{2}} (\varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3) \\
\varepsilon_{\gamma_1} &= \left(\frac{2}{3}\right)^{\frac{1}{2}} \left[\varepsilon_3 - \frac{1}{2}(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\right] \\
\varepsilon_{\gamma_2} &= \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{1}{2}} (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)
\end{aligned}$$

onde , $\sigma_1 = \sigma_1^{xx} \cdots, \sigma_4 = 2\sigma^{yz}, \cdots$

O modo (α) corresponde a ℓ=0 enquanto que os modos (γ) e (ε) a ℓ=2. Termos com ℓ=1 se anulam porque as tensões são simétricas em relação à inversão.

As tensões podem ser redefinidas em termos de pressão hidrostática :

$$p = \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1}{2}} \sigma_\alpha$$

que não se acoplam diretamente com a direção da magnetização via magnetostrição linear (neste caso a energia F_σ é independente das direções dos cossenos diretores) e tensões de cisalhamento :

$$\tau^2 = \frac{1}{2}\left(\sigma_{\gamma_1}^2 + \sigma_{\gamma_2}^2 + \sigma_{\gamma_1}^2 + \sigma_{\varepsilon_1}^2 + \sigma_{\varepsilon_1}^2\right)$$

Definindo as deformações estruturais que descrevem as distorções do envoltório atômico por uma expansão generalizada dos harmônicos esféricos.

Com (a) como distância de equilíbrio temos:

- Para a expansão generalizada:

$$\mathrm{I}_n^{\ell,m}(i) = \frac{(4\pi)^{\frac{1}{2}}}{\mathrm{N_c}} \sum_{\mathrm{i}} \left(\frac{r_{ij} - a}{a}\right)^n \mathrm{Y}_\ell^m \left(\frac{r_{ij}}{r_{ij}}\right)$$

onde $\mathrm{N_c}$ é o número de coordenação local.

O conceito das distorções do envoltório atômico assim definidas foram utilizadas por P. Allia e F. Vinai na formulação de um modelo teórico para o "aftereffect" da permeabilidade magnética dos amorfos [Allia e Vinai,1982,1986] que iremos descrever mais adiante.

- Para as deformações estruturais:

$$\begin{aligned}
\varepsilon_\alpha &= (3)^{\frac{1}{2}}\mathrm{I}_1^{(0,0)} \\
\varepsilon_{\gamma_1} &= \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\mathrm{I}_1^{(2,0)} \\
\varepsilon_{\gamma_2} &= \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{1}{2}\left(\mathrm{I}_1^{(2,2)} + \mathrm{I}_1^{(2,-2)}\right) = \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\bar{\mathrm{I}}_1^{(2,2)} \\
\varepsilon_{\varepsilon_1} &= \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{1}{2}\left(\mathrm{I}_1^{(2,1)} + \mathrm{I}_1^{(2,-1)}\right) = \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\bar{\mathrm{I}}_1^{(2,1)} \\
\varepsilon_{\varepsilon_2} &= \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\frac{1}{2}\mathrm{i}\left(\mathrm{I}_1^{(2,1)} - \mathrm{I}_1^{(2,-1)}\right) = \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}}\hat{\mathrm{I}}_1^{(2,1)}
\end{aligned}$$

$$\varepsilon_{\varepsilon_2} = \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{1}{2} \mathrm{i} \left(\mathrm{I}_1^{(2,2)} - \mathrm{I}_1^{(2,-2)}\right) = \left(\frac{8}{15}\right)^{\frac{1}{2}} \widehat{\mathrm{I}}_1^{(2,2)}$$

Expandindo o potencial de força central de dois corpos em torno de a, podemos reescrever as tensões em função das deformações, assumindo uma aproximação elástica, assim :

$$\sigma_n^{\ell,m}(i) = \frac{\mathrm{N_c}}{2(4\pi)^{\frac{1}{2}} \mathrm{v}_{ij}} \left[ba^2 \mathrm{I}_1^{\ell,m}(i) + \left(ba^2 + \frac{1}{2}ca^3\right) \mathrm{I}_2^{\ell,m}(i) + \cdots\right]$$

são estas tensões que acopladas à magnetização de saturação local respondem pela magnetoelasticidade dos amorfos, neste modelo.

2. A outra linha de pensamento sobre as propriedades magnetoelásticas dos amorfos pode ser resumida da seguinte maneira : O'Handley e Grant (1985) propõem a idéia de subdividir o material amorfo em pequenas unidades estruturais (alguns Angstrons de extensão) e tratá-los como pequenos cristais desacoplados elasticamente. A resposta magnetostritiva é uma média das derivadas em relação às deformações, da energia de anisotropia de cada microcristal. Assim $\lambda_s = \langle \lambda_{\mathrm{local}} \rangle$.

   Fahnle e Egami [Fahnle e Egami 1982] consideram os microcristais diferentes entre si, do ponto de vista dos tensores que os descrevem, bem como, das suas orientações espaciais. Usam duas estatísticas independentes:uma para os tensores locais $\mathrm{K}_{ijk\ell}^{\mathbf{local}}(r)$ e outra para os ângulos θ e ϕ que caracterizam a orientação dos cristalitos em um sistema de referência global. Esta aproximação implica em os acoplamentos elásticos entre as unidades estruturais, destruirem totalmente as correlações entre as modificações de K e a orientação dos eixos locais (mecanismo convencional de definição da constante de magnetostrição). Esta aproximação é equivalente ao modelo em que as tensões internas são totalmente responsáveis pelas propriedades magnetoelásticas dos amorfos. A consideração de unidades estruturais, neste caso, é irrelevante.

Furthmüller [Furthmüller *et al* 1987] extende a idéia, considerando um acoplamento elástico entre as unidades estruturais (caracterizadas por tensores idênticos), bem como a possibilidade de rotações rígidas das mesmas. Com este novo grau de liberdade, aparecem diversas possibilidades. A aplicação do modelo a cada caso específico, depende do conhecimento dos valores exatos dos tensores locais que caracterizam as unidades estruturais e suas interações com as unidades vizinhas. As possibilidades para λ são :

(a) λ_s será devido ao acoplamento elástico quando a média resultar nula ($\langle\lambda\rangle = 0$), sem que localmente seja nulo ($\lambda_{ijk\ell}^{\text{local}} \neq 0$) ;

(b) $\lambda_s = \langle\lambda\rangle$ quando as unidades estruturais forem desacopladas elasticamente

(c) λ_s pode ser resultado das duas contribuições, que podem inclusive se cancelar, resultando em $\lambda_s = 0$.

Independentemente da maneira de definir as propriedades magnetoelásticas: a partir das tensões locais, ou das unidades estruturais, o conceito de acoplamento entre tensão e a magnetização local, como já mencionado, é o mesmo que foi desenvolvido para os cristais.

2.3 Energia Magnetostática

As considerações que faremos a respeito da energia magnetostática são igualmente válidas para os cristais e os amorfos, uma vez que independem completamente de detalhes estruturais.

Como se sabe, o campo magnético é um campo sem fonte, isto é:

$$\nabla \cdot \mathbf{H}_0 = 0.(\text{no vácuo})$$

entretanto, dentro da matéria, é $\mathbf{B}$, e não $\mathbf{H}$, que é um campo sem fonte, ou seja :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0.$$

Isto significa que se em alguma descontinuidade, por exemplo a superfície da amostra, houver uma densidade de carga aparente $D_m = \mathbf{n} \cdot \mathbf{M}_s$, onde $\mathbf{n}$ é o vetor normal à superfície e $\mathbf{M}$, a magnetização local, teremos :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 = \nabla \cdot (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_d) + 4\pi \nabla \cdot \mathrm{M}$$

ou seja :

$$4\pi \nabla \cdot \mathbf{M} = -\nabla \cdot \mathbf{H}_d$$

Assim, foi necessário definir um campo $\mathbf{H}_d$, chamado campo de desmagnetização, para dar conta da divergência da magnetização. Sempre que ocorrer o aparecimento de cargas magnéticas, ficará estabelecido um campo, com sentido contrário ao da magnetização, cuja intensidade depende do valor local da magnetização e da forma da amostra. Somente em alguns casos especiais, tal como, para um elipsóide com o eixo paralelo a um campo externo, é que tal campo será uniforme e poderá ser determinado com precisão.

O campo desmagnetizante existe, mesmo no caso de não haver campo aplicado, desde que, nas descontinuidades, existam cargas magnéticas. A energia associada a este campo, chamada energia magnetostática, se escreve :

$$\mathrm{F}_{mst} = -\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{H}_d$$

Esta energia contribui para as propriedades magnéticas dos materiais, serem anisotrópicas, uma vez que ela é função da direção da magnetização local. Ela desempenha um papel fundamental na teoria de domínios de Néel. Em particular, os domínios de fechamento tem sua origem diretamente ligada à redução da energia livre do sistema através da minimização da contribuição magnetostática. Ela será mínima quando $\mathbf{n} \cdot \mathbf{M} = 0$, ou seja, não exista componente da magnetização normal à superfície da amostra.

Esta energia portanto é um empecilho para a existência de domínios magnetizados perpendicularmente ao plano das fitas amorfas e, em menor grau, segundo a largura das mesmas. Em outras palavras, a energia magnetostática favorece a magnetização ao longo do eixo das fitas. Isto pode ser representado por uma contribuição para a energia de anisotropia do tipo :

$$\boxed{E_{mst} = -K_L \cos^2 \theta}$$

onde K_L é a constante de anisotropia longitudinal, de origem magnetostática . A esta contribuição dá-se o nome de " Efeito Forma".

Neste trabalho, em particular, estaremos envolvidos com a anisotropia residual (para amostras não tratadas), que tem uma contribuição de origem magnetoelástica, e com sua dependência com campo magnético e tensão mecânica.

2.4 Considerações Gerais

É sabido que as fitas amorfas virgens ("as cast") são magneticamente anisotrópicas e que tal anisotropia tem diversas origens. Entre elas temos uma anisotropia (observada por curvas de torque) no plano da amostra (em forma de disco), que segundo Morita [Morita *al* 1979], não é devida ao acoplamento tensão-magnetostrição e nem ao efeito forma interno, e sim, é devida ao ordenamento de pares atômicos. Esta conclusão foi obtida a partir da dependência observada desta anisotropia com a composição, em amostras "as cast" de $(Fe_{1-x}Co_x)_{78} Si_{15} B_{10}$, sendo esta anisotropia descrita por :

$$E_{res} = -K_{res} \cos^2 \theta$$

com K_{res} - constante de anisotropia residual

Morita verificou que a dependência de K_{res} com a concentração (x) é bem diferente daquela observada para (λ vs. x) e ($\mathbf{M}_s$ vs. x), de onde concluiu

que esta anisotropia não é de origem magnetoelástica, com $K = 3/2\lambda\sigma$, e nem é devida ao efeito forma, onde teríamos $K \alpha \mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_s$ ou $K \alpha \mathbf{M}_s^2$.

Por outro lado, esta anisotropia não é muito alterada por tratamentos térmicos onde as tensões são aliviadas e, permanece, mesmo após a cristalização da amostra. Estas observações levaram Takahashi [Takahashi e Ishio 1977] a interpretar os resultados em termos do comportamento dos microcristais (um átomo e seus vizinhos) durante a solidificação das ligas. Ele considera que uma fraca orientação dos microcristais é responsável tanto pela anisotropia observada no estado amorfo como pelo direcionamento no processo de cristalização. A amostra cristalizada apresenta, desta forma, uma anisotropia semelhante a da amostra amorfa.

Outra interpretação foi dada por Fujimori [Fujimori 1980] que também considera o efeito do ordenamento dos pares atômicos. Durante a solidificação das ligas amorfas, elas são altamente cisalhadas, à semelhança do que ocorre durante a laminação a frio dos materiais cristalinos. As tensões de cisalhamento, aparentemente, atuam de formas diferentes sobre as ligações químicas entre os pares metal-metal e metal-metalóide. Como resultado, temos uma anisotropia estrutural inicial, no sentido do fluxo de material fundente.

Esta anisotropia pode ser fortemente modificada por tratamentos térmicos com campo magnético (paralelo ou perpendicular ao eixo da fita), com tensão mecânica ou com os dois, simultaneamente. Berry [Berry e Pritchet 1975], mostrou a possibilidade de alterar as propriedades magnéticas das ligas amorfas por tratamentos térmicos com campo e, Gyorgy [Gyorgy *et al* 1976] ilustrou este fato com micrografias dos domínios de fitas submetidas a campos longitudinais e transversais.

O papel do ordenamento dos pares nestas condições foi mostrado nos trabalhos pioneiros de Luborsky [Luborsky e Walter 1977], Fujimori [Fujimori *et al* 1977], Takahashi e Miyazaki [Takahashi e Miyazaki 1978]. Recozimentos sob tensão, da mesma forma, induzem anisotropias estruturais [Gyorgy 1976 ; Nielsen *et al* 1983] atribuidas ao ordenamento de pares [Luborsky e Walter 1977]. A presença dos metalóides nas ligas amorfas desempenha um

importante papel no processo de ordenamento devido às fortes ligações destes átomos com os átomos metais de transição [Allia e Vinai 1978; Becker 1978].

Por outro lado, o acoplamento magnetoelástico e o efeito forma tem sido identificados como os responsáveis pela anisotropia em diversas situações, entre elas, pela anisotropia induzida por tensão [Nielsen e Nielsen 1980a 1980b, Fernandez-Gubieda *et al* 1987]; pelos padrões de domínios e a dinâmica das paredes de Bloch observados em amostras "as cast" [Livingston 1979, Zaveta *et al* 1987, Draganowska *et al* 1989, Kraus 1990].

Outra fonte de anisotropia que é específica dos amorfos é a assim chamada anisotropia de um-íon [Graham e Egami 1978]. Cada íon magnético sente uma vizinhança atômica diferente. Isto determina a direção estável de seu momento magnético que, por sua vez, contribui para a anisotropia local. Em princípio existe uma aleatoriedade das orientações locais o que torna esta contribuição desprezível.

A anisotropia magnética dos amorfos ainda é objeto de controvérsias mas, de modo geral, tem sido considerada como uniaxial e os fenômenos magnéticos descritos a partir desta premissa.

Capítulo 3

Relaxação Estrutural

Uma vez que as ligas metálicas amorfas são obtidas por resfriamento rápido a partir do estado líquido, a estrutura da liga não estará em equilíbrio térmico e, um recozimento posterior, provocará uma relaxação estrutural. Os mecanismos de relaxação são chamados processos de ordenamento de curto alcance que passaremos a descrever.

3.1 Ordenamento Químico de Curto Alcance (CSRO)

A grande maioria dos metais amorfos são ligas, logo, o estado de mistura dos seus componentes é um parâmetro importante. Ele é muitas vezes identificado como o responsável por alterações das propriedades de uma amostra para outra, ou de um lote para outro, ou ainda, pelas modificações observadas quando as amostras são tratadas térmica ou mecanicamente. Em muitos casos uma mistura perfeitamente aleatória não é obtida, de tal forma que a composição química, na vizinhança de um átomo, pode ser muito diferente da média. Os átomos, nestas condições apresentam uma ordem química de curto alcance (CSRO).

Como os efeitos da ordem química, na maioria das propriedades, é limi-

tado à primeira camada de vizinhos, a maneira mais simples de definir a CSRO é usar, como parâmetro, o desvio na composição dos primeiros vizinhos em relação à média. Para um sistema binário (A-B) este parâmetro de ordem é :

$$\alpha_{\mathrm{p}} = 1 - \frac{\mathrm{Z_A}}{\langle \mathrm{Z} \rangle \mathrm{C_B}} = 1 - \frac{\mathrm{Z_B}}{\langle \mathrm{Z} \rangle \mathrm{C_A}}$$

onde $\mathrm{Z_A}$ é o número de vizinhos B de um átomo A,
$\mathrm{C_A}$ é a concentração de átomos A e
$\langle \mathrm{Z} \rangle$ é o número de coordenação médio

α_{p} é conhecido como parâmetro de Warren - Cowley [Warren *et al* 1951, Cowley 1950]. Entretanto, este parâmetro supõe todos os átomos a uma mesma distância, o que limita sua utilização. Outro parâmetro que abre a possibilidade de distâncias diferentes entre os átomos foi definido por Bhatia [Bhatia e Thornton 1970] como :

$$\rho_{cc}(r) = \frac{1}{4\pi r^2 \mathrm{N}} \sum_{ij} \delta(r - r_{ij})(\eta_i^{\mathrm{A}} - \mathrm{C_A})(\eta_i^{\mathrm{B}} - \mathrm{C_B})$$

onde r_{ij} é a distância entre os átomos i e j, $\delta(r - r_{ij})$ é uma delta de Kronecher e

$$eta_i^{\mathrm{A}} = \begin{cases} 1 \text{ - se o iésimo sítio estiver ocupado por um átomo A} \\ 0 \text{ - caso contrário} \end{cases}$$

Estes parâmetros, entretanto, não são direcionais e, para podermos explicar propriedades anisotrópicas, eles não serão convenientes. Necessitamos um parâmetro de CSRO direcional, por exemplo o definido por Egami em [Egami 1978] que é :

$$\mathrm{I}_{\eta}^{\ell,m} = \frac{(4\pi)^2}{\mathrm{C_A Z_A N}} \sum_{ij} \left(\frac{r_{ij} - a}{a} \right) \eta_i^{\mathrm{A}} \left(\frac{\mathrm{C_B Z_B}}{\langle \mathrm{Z} \rangle} - \eta_i^{\mathrm{B}} \right) \mathrm{Y}_{\ell}^{m} \left(\frac{\boldsymbol{r}_{ij}}{r_{ij}} \right)$$

Z_A - número de coordenação do átomo A

a - distância média a partir do átomo A

Y_ℓ^m - harmônicos esféricos

Esta equação é uma extensão do parâmetro de Warren - Cowley, sendo α_p dada aproximadamente por:

$$\alpha_p \approx I_0^{0,0}(A)\frac{\langle Z\rangle}{C_B Z_B} = I_0^{0,0}(B)\frac{\langle Z\rangle}{C_A Z_A}$$

$I_n^{\ell,m}(A)$ pode ser determinada quando o parâmetro de Bhatia ($\rho_{cc}(r)$) for conhecido para todas as direções de r. Assim, o CSRO do sistema fica exatamente definido.

Por outro lado, sua determinação experimental é muito difícil. Algumas tentativas foram feitas por difração de neutrons, usando a técnica de substituição isotópica [Mizoguchi *et al* 1978]; por difração de raios X [Waseda 1980] e outras.

A precisão e sensibilidade destas técnicas ainda não é suficiente para uma total explicação das propriedades físicas e químicas dos amorfos, somente sendo possível conjeturar com base em considerações circunstanciais que, alterações devidas a tratamentos térmicos, em algumas importantes propriedades, são devidas a mudanças na CSRO.

Por exemplo, é bem sabido que uma liga tratada térmicamente, sob ação de campo magnético, desenvolve uma anisotropia magnética na direção do campo [Berry e Pritchet 1975, Luborski e Walter 1977, Chambron e Chamberod 1980, Ho *et al* 1982, Severino 1991]. A constante de anisotropia, neste caso, segue uma cinética de aproximação à saturação que é dependente da temperatura, como ilustrado nas figuras 3.1 e 3.2.

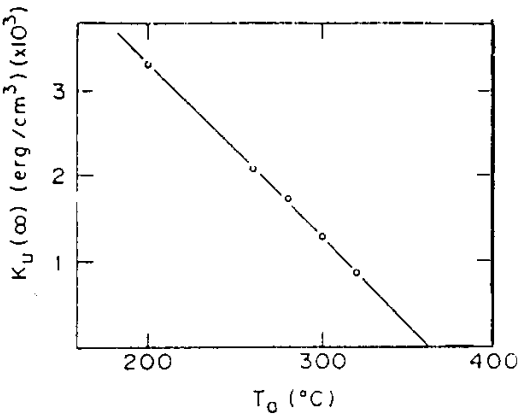

Figura 3.1: Dependência de $K_\mu(\infty)$ com a temperatura de annealing T_a para a liga $Fe_{40}Ni_{38}Mo_4B_{10}$, após Chambron [Chambron e Chamberod 1980]

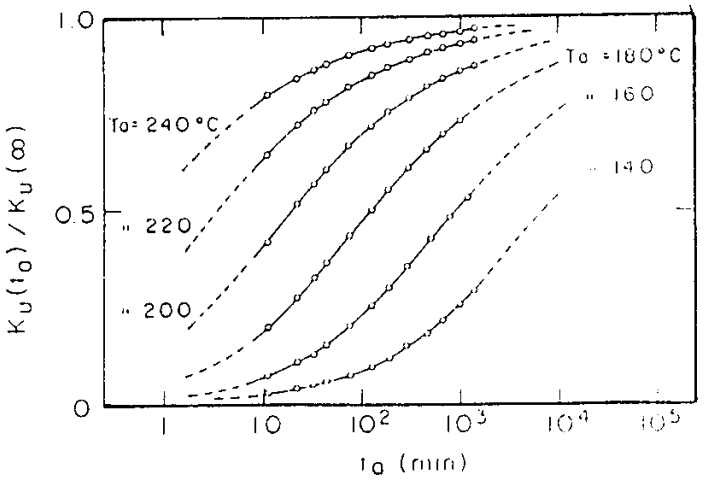

Figura 3.2: Cinética de $K_\mu(t_a)/K\mu(\infty)$ de saturação para a liga $Fe_{40}Ni_{40}P_{14}B_6$, após Chambron [Chambron e Chamberod 1980]

Nos materiais cristalinos, a anisotropia induzida por campo é um fenômeno bem conhecido e explicável por CSRO direcional dos íons magnéticos [Néel 1954], e parece que o mesmo mecanismo pode ser usado no caso das ligas amorfas, a julgar pela dependência com a composição [Fujimori *et al* 1977]. Esta anisotropia induzida é muito importante para fins práticos uma vez que ela determina a permeabilidade [Masumoto e Egami 1981], o "aftereffect" da permeabilidade [Jagielinski 1982], e, em alguns casos, as perdas magnéticas [Luborski *et al* 1976, Fujimori *et al* 1981] das ligas ferromagnéticas amorfas.

3.2 Ordem Topológica de Curto Alcance - (TSRO)

Apesar de muitas propriedades dependerem da CSRO, elas tambem dependem de detalhes geométricos da estrutura ou do grau de aleatoriedade da estrutura. Esta dependência é melhor estudada em amorfos puros (um só tipo de átomo). Egami denominou este tipo de ordem de: ordem topológica de curto alcance (TSRO) em [Egami 1978] e inclui esta TSRO em um conceito mais amplo de ordem geométrica de curto alcance (GSRO), distinguindo a TSRO da ordem distorcional de curto alcance (DSRO). TSRO é associada com as modificações na pressão hidrostática p, já definida no capítulo 2, enquanto a DSRO é associada às tensões de cisalhamento.

Uma das mais importantes propriedades das tensões a nível atômico é que sua média volumétrica é sempre nula, uma vez que elas são iguais às tensões externas. Logo, o estado de tensões é caracterizado por seus segundos momentos $\langle p^2 \rangle$ e $\langle \tau^2 \rangle$. Note-se que τ é o valor rms das tensões de cisalhamento. Por serem de segunda ordem, as modificações nos estados de tensões atômicas pouco afetam as propriedades que dependem de todos os átomos (como a densidade), entretanto, tem forte contribuição para as propriedades com dependência estrutural, como as mecânicas e magnéticas.

Mudanças em p resultam em transporte atômico, com modificações de

volume livre, enquanto que modificações em τ não envolvem transporte. As reorientações de τ, entretanto, são responsáveis pela anelasticidade, pelo "aftereffect" magnético [Allia 1982,1986], etc. As mudanças em p e τ fornecem os mecanismos para a CSRO.

Alguns processos de relaxação ocorrem de forma irreversível. Tais processos podem ser satisfatoriamente explicados em termos da redução em $\langle p^2 \rangle$, o que não é de surpreender se levarmos em conta a dependência com a temperatura de $\langle p^2 \rangle$ e $\langle \tau^2 \rangle$. Como mostrado por Egami, $\langle \tau^2 \rangle$ congela em temperaturas bem próximas da temperatura de fusão onde o tempo de relaxação atômica é da ordem de 10^{-11} a 10^{-12}s, logo $\langle \tau^2 \rangle$ pode relaxar para seu estado de menor energia durante o próprio processo de solidificação, mesmo em altas taxas de resfriamento (10^5 ,10^6 K/s). Por outro lado, na temperatura em que $\langle p^2 \rangle$ congela, a viscosidade e o tempo de relaxação atômica são bem maiores, de modo que pode congelar em um estado bem afastado daquele de equilíbrio. Com subsequentes recozimentos, $\langle p^2 \rangle$ relaxa de forma irreversível enquanto $\langle \tau^2 \rangle$ permanece inalterado.

Relaxações estruturais irreversíveis podem alterar a CSRO. Segundo o parâmetro de Warren - Cowley, isto só pode ocorrer quando a pressão local p é alterada. Por outro lado, a definição mais geral de Egami admite mudanças da CSRO tanto devidas a p como às tensões de cisalhamento τ, pois $I_\eta^{\ell,m}(A)$ varia na maioria dos átomos vizinhos de A.

Como o mecanismo pelo qual a CSRO varia não é único, sua cinética de variação também será uma composição de efeitos.

Quando ocorre uma transformação de cisalhamento local que altere somente a tensão local τ, sem quebra de ligações entre os átomos, e portanto sem alteração topológica, temos uma transformação do tipo DSRO pura. Deve-se notar que $I_0^{2,m}$ (A) só é alterada quando a TSRO é alterada, enquanto que uma DSRO pura altera $I_1^{2,m}(A)$.

Muitas propriedades físicas dos amorfos (resistividade elétrica, calor específico, constantes elásticas, permeabilidade magnética, temperatura de Curie, etc.) são claramente influenciadas por mecanismos de reordenamento

reversíveis e irreversíveis, refletindo o fato de mais de um mecanismo atuar ao mesmo tempo.

Apesar de algumas partes da descrição de Egami serem ainda conjeturas, sem rigorismo quantitativo, os conceitos introduzidos explicam bastante bem os fenômenos observados.

Capítulo 4

"Aftereffect" da Permeabilidade Magnética

O decréscimo com o tempo, da permeabilidade magnética (μ_i) em baixos campos, após a desmagnetização, define o fenômeno de "aftereffect" . Este fenômeno é observado tanto em cristais como em materiais amorfos ferromagnéticos.

Particularmente complexo no caso de amorfos, por depender de fatores internos nem sempre controláveis : a estrutura de domínios, as tensões internas geradas na sua produção, as anisotropias de forma e estruturais; bem como de fatores externos : intensidade do campo aplicado, tensões aplicadas, temperatura, etc; é, entretanto, facilmente observado.[Kisdi-Koszo *et al* 1980, Allia e Vinai 1982, Kronmüller 1983, Allia *et al* 1986, Resende *et al* 1987, Cruz Filho *et al* 1991] .

Após qualquer rearranjo das paredes dos domínios, μ_i diminui gradualmente com o tempo. A razão $\Delta\mu/\mu = [\mu_i(t_1) - \mu_i(t_2)]/\mu_i(t_2)$ é uma das definições da intensidade do "aftereffect" entre os tempos fixos t_1 e t_2 ($t_2 > t_1$), e a definição que usamos neste trabalho.

Os métodos experimentais utilizados na exploração da dinâmica do fenômeno vem sendo constantemente aprimorados :com o método impulsivo

[Allia *et al* 1980], já é possível estudar intervalos de tempo desde 10^{-5} s até 10^{6} s após a desmagnetização, tanto em fitas [Allia 1989] como em fios amorfos [Cruz Filho et al 1991]. Em termos de temperatura, é possível medir o "aftereffect" desde 4.2K [Allia *et al* 1987] até a temperatura de Curie [Bourrous e Kronmüller 1989]. Técnicas recentemente desenvolvidas, mantendo a indução magnética B constante permitem complementar o estudo da dinâmica das paredes, com informações relevantes que podem ser obtidas de medidas do campo de viscosidade [Wang Qun e Ho Kas-Yuan 1988, Allia *et al* 1991]. Por outro lado, a natureza dos processos que originam o "aftereffect" ainda é objeto de controvérsias.

De modo geral, $\Delta\mu/\mu$ origina-se de ordenamentos direcionais de sistemas que interagem com a magnetização e podem assumir diferentes configurações. Os saltos entre configurações são termicamente ativados e acompanham as mudanças da direção da magnetização local. A mobilidade das paredes de Bloch de 180° é função do estado em que se encontram os sistemas ordenáveis em seu interior. O decréscimo com o tempo, da mobilidade das paredes (que resulta em $\Delta\mu$) está associado com a volta dos sistemas ordenáveis ao seu estado de menor energia. As configurações que um sistema ordenável pode assumir são descritas como sistemas clássicos de dois níveis não correlacionados. Estas configurações, quase equivalentes energeticamente, são separadas por uma barreira de potencial, caracterizada por uma energia de ativação, que é diferente para cada ponto do material. Estes aspectos são comuns aos modelos atuais que descrevem o "aftereffect" em amorfos. Neste capítulo faremos uma descrição do modelo estrutural de P. Allia e F. Vinai, antes porém, algumas comparações entre o "aftereffect" de cristais e amorfos.

No caso de cristais, existe unanimidade em relacionar o "aftereffect" com a presença de átomos específicos ou pares de átomos cujo ordenamento é caracterizado por energias de ativação bem definidas. Por outro lado, nos amorfos, devido ao alto grau de desordem estrutural, cada sistema tem sua energia de ativação, cuja superposição resulta em um espectro largo e praticamente sem estrutura, para a energia de ativação.

Nos cristais, uma única energia de ativação implica em um único tempo de relaxação e a dependência da permeabilidade com o tempo fica:

$$\mu_i(t) = \mathrm{A} + \mathrm{B}\exp^{\frac{-t}{t_0}}$$

onde A e B são constantes.

Nos amorfos, a superposição de muito termos exponenciais resulta em :

$$\mu_i(t) = \mathrm{A}' + \mathrm{B}'\ln \mathrm{t}$$

onde A' e B' são constantes

Outro comportamento, marcadamente diferente, mas ainda relacionado ao fato de nos cristais termos somente uma energia de ativação, é a dependência do fenômeno "aftereffect"com a temperatura. Nos cristais ele só é observado em uma estreita faixa de temperatura, enquanto que nos amorfos ele existe em qualquer temperatura, obviamente abaixo da de Curie [Allia *et al* 1980, 1987].

A intensidade $\Delta\mu/\mu$, nos amorfos, é função da temperatura, geralmente crescendo com T, uma vez que, nestas condições, o número de sistemas ordenáveis também está crescendo. O grau de amorficidade da amostra desempenha um papel relevante na intensidade do "aftereffect" e, mudanças da ordem por relaxação estrutural, implicam em mudanças de $\Delta\mu/\mu$ [Allia et al 1981, 1983, 1991].

Um aspecto fundamental para a formulação da teoria estrutural do "aftereffect", é que sua intensidade é proporcional ao quadrado da constante de magnetostrição da amostra [Allia et al 1982, 1986, Kronmüller 1983, Resende *et al* 1987]. Com base neste fato, a suposição de um acoplamento magnetostritivo entre os sistemas ordenáveis e a magnetização é bastante natural. Como também é natural caracterizar os sistemas ordenáveis em termos de tensões e deformações locais, adotando os conceitos introduzidos por Egami [Egami *et al* 1980,Egami e Srolovitz 1982]. Como vimos no capítulo anterior, as propriedades estruturais dos amorfos são por ele descritas por tensões a

nível atômico e coeficientes de simetria local. As tensões são proporcionais às deformações locais que descrevem o grau de distorção estrutural da primeira camada de vizinhos de um dado átomo. Assim, passaremos a tratar os sistemas ordenáveis como defeitos magneticamente ordenáveis ou, mais compactamente, como defeitos magnéticos.

As deformações, descritas por um tensor cartesiano, simétrico, são definidas, em cada ponto, por seis componentes. Em uma representação adequada, uma das componentes transforma-se, sob rotação, como um harmônico esférico com $\ell = 0$, enquanto as outras, com $\ell = 2$, como vimos no capítulo anterior. Usaremos, genericamente, o símbolo ε para designar as cinco componentes de cisalhamento :ε_{γ_1}, ε_{γ_2}, $\varepsilon_{\varepsilon_1}$, $\varepsilon_{\varepsilon_2}$, e $\varepsilon_{\varepsilon_3}$,. Estas componentes transformam-se como harmônicos Tesserais $Z_{2\mu}$, isto é , funções reais que são combinações lineares dos harmônicos esféricos Y_2^m .

As deformações congeladas nos amorfos contribuem para a energia de anisotropia magnética efetiva, através de um termo magnetoelástico que pode ser escrito localmente como :

$$F_{me}(i) = \sum_{\mu,\mu'} (\lambda_c \delta_{\mu\mu'} + \lambda_{\mu\mu'})\, \sigma_{\mu'} Z_{2\mu}(\Omega_m)$$

onde :

- $\delta_{\mu\mu'}$ = delta de Kronecker
- Ω_m define a direção da magnetização em coordenadas polares em um sistema de referência arbitrário
- as tensões são definidas por $\sigma_\mu = \overline{C}_\gamma \varepsilon_\mu$, (aproximação elástica)
- λ_c é uma constante de magnetostrição, homogenea no material, dada por:

$$\lambda_c = -\left(\frac{8\pi}{15}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\overline{z}}{2}\right) \overline{C}_\gamma^{-1} \cdot f(a)$$

onde $\overline{z}$ é o número de coordenação médio, $f(a)$ é a parte radial da energia de anisotropia local $f(r)$, calculada no ponto a , que é uma distância média entre vizinhos.

- $\lambda_{\mu\mu'}$ é uma componente da constante de magnetostrição, função de posição e contém informações sobre a simetria das ligações direcionais dos vizinhos do iésimo átomo, sendo dada por :

$$\lambda_{\mu\mu'} = \left(\frac{8\pi}{15}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{4\pi}{5}\right) \overline{C}_{\gamma}^{-1} \left[\frac{1}{2}a \cdot f'(a) - f(a)\right] \cdot$$

$$\sum_{j} Z_{2\mu}(\Omega_{ij}) \cdot Z_{2\mu} \cdot Z_{2\mu'}(\Omega_{ij})$$

Como $f(r)$ decresce rapidamente, a contribuição dominante para F_{me} vem essencialmente dos átomos de dentro do primeiro pico da função de distribuição radial (RDF), do material..

A partir da energia magnetoelástica local $F_{me}(i)$, Allia e Vinai (1986) mostram que o "aftereffect" da permeabilidade magnética, de natureza magnetostritiva, pode ser dado por :

$$\frac{\Delta\mu}{\mu} = 2,25 \cdot \frac{0,3}{32} \frac{N_T}{kT} \frac{G(t_1) - G(t_2)}{H_e \cdot I_s} \lambda_{eff}^2 \langle\tau^2\rangle$$

onde :

- N_T é o número de defeitos reorientáveis a uma dada temperatura T
- H_e é o campo aplicado
- I_s é a magnetização de saturação
- G(t) é uma função decrescente com o tempo
- $\langle\tau^2\rangle$ é o segundo momento das flutuações na tensão de cisalhamento, e
- $\lambda_{eff}^2 = \left(\frac{8\pi}{25}\right) \cdot (\lambda_s^2 + \langle m\rangle\lambda_\alpha^2)$ com
  - λ_s : magnetostrição de saturação ,

* $\lambda_\alpha = \left(\frac{1}{4\pi}\right)\left(\frac{8\pi}{15}\right)^{\frac{1}{2}} \cdot \overline{Z} \cdot \overline{C}_\gamma^{-1}\left[\frac{1}{2}a \cdot f'(a) - f(a)\right]$, e
* $\langle m \rangle$: valor médio de um parâmetro que descreve a ordem local

$$m_i = \frac{5}{2}\sum_{jk}\left[P_2\left(\cos\theta_{jk}\right)\right]^2 - 1$$

a soma é feita sobre as ligações direcionais com os vizinhos mais próximos do iésimo átomo e P_2 são os polinômios de Legendre de segunda ordem.

Assim, pela primeira vez, o "aftereffect" foi relacionado a um parâmetro estrutural que descreve as distorções angulares das camadas de vizinhos.

Pela presente aproximação, pode-se mostrar que λ_α e λ_s não se anulam simultaneamente, o que explica como uma amostra com λ_s próximo de zero, pode apresentar "aftereffect" de origem magnetostritiva. No caso de $\lambda_s = 0$ temos:

$$\lambda_{eff}^2 \approx \langle m \rangle \lambda_\alpha^2 \neq 0$$

No caso de diferentes condições de amorficidade, as diferenças nas intensidades de "aftereffect" podem ser relacionadas com os diferentes valores de N_T ,$\langle m \rangle$ e $\langle \tau^2 \rangle$ [Allia *et al* 1980, 1983].

As modificações produzidas por relaxação estrutural, podem ser atribuídas às modificações de N_T e $\langle m \rangle$, mas não a $\langle \tau^2 \rangle$, pois, como foi mostrado por Egami[Egami *et al* 1980,Egami e Srolovitz 1982], este parâmetro só seria modificado por tratamentos térmicos em temperaturas acima daquela de cristalização da amostra.

Amostras com diferentes composições apresentam diferentes intensidades de "aftereffect" devido, entre outros fatores, aos diferentes valores da constante de magnetostrição efetiva.

Neste modelo, o "aftereffect" tem puramente uma origem magnetostritiva e os defeitos são flutuações localizadas na tensão de cisalhamento. Considera-se que o acoplamento tensão -magnetostrição apresenta duas configurações

quase equivalentes, energeticamente, que são representadas por um sistema de dois níveis de energia. Cada defeito magnético comporta-se isoladamente e, quando excitado, relaxa, com seu tempo próprio, para um estado de menor energia.

Outro modelo que descreve adequadamente o comportamento do "aftereffect" é o de Kronmüller [Kronmüller 1983] . Este modelo postula que os acoplamentos entre os defeitos magnéticos e a magnetização não são puramente magnetostritivos mas que as interações "spin-órbita" e de troca desempenhem também um papel importante. Na visão de Kronmüller ,os defeitos que contribuem para o "aftereffect" são formados por um conjunto de átomos interagentes, com um deles podendo saltar entre duas posições, devido a presença de um espaço vazio. As duas posições que este átomo móvel pode ocupar definem duas direções para o eixo de anitropia local e dois níveis de energia quase equivalentes. Em cada posição, as interações com os vizinhos são diferentes, principalmente quanto à orientação.

Os dois modelos descrevem igualmente bem o fenômeno, não sendo possível, por medidas de "aftereffect" avaliar as contribuições das interações "spin-órbita" e de troca, que diferenciam os modelos. Normalmente as medidas de "aftereffect" envolvem médias sobre o volume da amostra e são resultado de uma média de diversas medidas. As flutuações observadas entre as medidas individuais são devidas à multiplicidade de configurações de domínios energeticamente equivalentes. Tais flutuações mascaram contribuições menores para a energia de interação entre os átomos.

Capítulo 5

Modelo para a Susceptibilidade Inicial

Neste capítulo, mostraremos o modelo teórico que desenvolvemos para a dependência da susceptibilidade de fitas amorfas com a tensão mecânica. A interpretação dos resultados é feita em termos da competição entre os efeitos das anisotropias iniciais e as impostas por tensão e campo. Estas anisotropias modificam os padrões de domínios, portanto, atuam sobre os mecanismos de magnetização.

O modelo teve origem nas observações do comportamento da susceptibilidade em amostras de composição $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$. Em princípio, estas medidas foram feitas, na tentativa de esclarecer a dependência da magnetostrição com a tensão, que tem sido reportada por diversos autores [Herzer 1986, Barandiarán *et al* 1987, Siemko et al 1987,Kraus 1989]. A conclusão a que eles tem chegado é de que a magnetostrição é uma função linear da tensão aplicada, com uma constante de proporcionalidade negativa, da ordem de 10^{-10}/MPa.

Basicamente, dois métodos de medida de λ_s tem sido utilizados: o método SAMR (rotação da magnetização por pequenos ângulos) [Narita *et al* 1980] e, através da derivada da susceptibilidade com relação a tensão. Este último

método assume que a anisotropia imposta pela tensão seja uniaxial, isto é :

$$\begin{aligned} \mathrm{E} &= -\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \cos^2\theta \qquad \text{ou, com} \qquad \mathrm{K}_\mu = \frac{3}{2}\lambda\sigma \\ \mathrm{E} &= -\mathrm{K}_\mu \cos^2\theta \end{aligned}$$

Considerando a dependência da susceptibilidade com a constante de anisotropia como :

$$\chi = \frac{\mu_0 \mathrm{M}_s^2}{2\mathrm{K}_\mu}$$

teremos

$$\frac{\partial}{\partial\sigma}\chi^{-1} = \frac{2}{\mu_0 \mathrm{M}_s^2}\frac{\partial}{\partial\sigma}\mathrm{K}_\mu$$

de onde obtem-se:

$$\lambda_s = -\frac{\mu_0 \mathrm{M}_s^2}{3}\frac{\partial}{\partial\sigma}\chi^{-1}$$

concluindo-se que λ_s acompanha a derivada do inverso da susceptibilidade.

Na tentativa de observar esta dependência, efetuamos medidas de $\chi \times \sigma$ na amostra $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$, que apresenta $\lambda_s \approx 0$ e aproveitamos para extender tais medidas à família $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$ que apresenta $\lambda_s > 0$ para $x > 4.6$ e $\lambda_s < 0$ para $x < 4.6$. Passaremos , por simplicidade, a tratar as amostras desta família pelos valores de Fe_x que as caracterizam.

Para a amostra $Fe_{4.6}$ foi observada uma inversão de sinal da derivada, ou seja um máximo na curva $\chi \times \sigma$, como já reportado por outros autores [Barandiarán *et al* 1987]. Entretanto, diferentemente das amostras utilizadas por outros autores, nossa amostra apresenta magnetostrição negativa ($\lambda_s = -1 \times 10^{-7}$), portanto, pela dependência : $\lambda_s = \lambda_0 + k\sigma$ com $k = -10^{-10}$ /MPa, não poderia apresentar mudança de sinal em λ_s, mas sim, deveria tornar-se cada vez mais negativa! Por outro lado, as amostras Fe_2 e Fe_4

, que apresentam, respectivamente $\lambda_s = -6 \times 10^{-7}$ e $\lambda_s = -20 \times 10^{-7}$, também apresentaram máximos nas curvas $\chi \times \sigma$ quando submetidas a campos magnéticos estáticos adequados, em tensões não compatíveis com o valor de (k).

Desta forma, passamos a questionar a mudança de sinal de λ_s, ou, pelo menos, a determinação de λ_s através da derivada da susceptibilidade. Como este método está baseado na uniaxialidade da anisotropia, resolvemos reconsiderar esta premissa.

As anisotropias magnéticas podem ter diversas origens, como vimos no capítulo 2 e elas determinam os padrões de domínios observados em amostras "as cast". Eles são usualmente irregulares, porém, pelo menos dois tipos de domínios tem sido claramente identificados [Kronmüller *et al* 1979]:

1. domínios largos, com a magnetização no plano da fita com largura típica de 100-300μm. Estes padrões podem aparecer em forma de tiras mais ou menos regulares, ou em forma de estrêla, divergindo a partir de um centro, como mostra a figura 5.1

2. domínios estreitos, com largura entre 1 e 30 μm , que tem sido identificados como domínios de fechamento e que mostram a existência de domínios internos com magnetização perpendicular ao plano da fita, como mostrado na figura 5.2. Estes domínios normalmente cercam os domínios largos e aparecem, principalmente, em materiais altamente magnetostritivos.

É sabido que os padrões de domínios traduzem as condições locais da anisotropia magnética que , como vimos no capítulo 2, é devida a: energia magnetoelástica associada às tensões locais; anisotropia estrutural,relacionada ao ordenamento de pares induzido no processo de fabricação; anisotropia de forma, devida à energia magnetostática e anisotropia de um-ion, devida à assimetria do campo sentido pelo átomo.

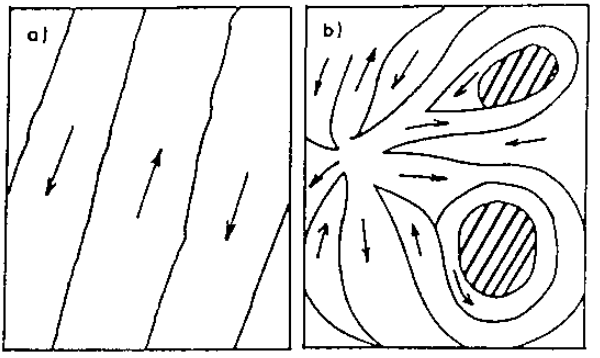

Figura 5.1: Padrão típico de domínios em fitas amorfas

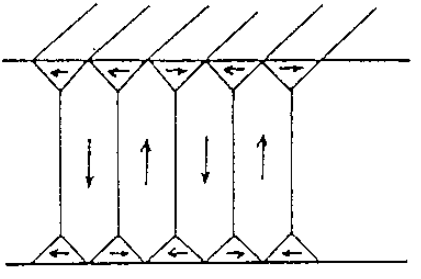

Figura 5.2: Domínios típicos nas regiões de magnetização perpendicular

5.1 Efeito da aplicação de tensão na susceptibilidade

Consideremos um segmento do material amorfo, com magnetização no plano da fita, formando um ângulo θ com seu eixo . Vamos supor que o processo de magnetização seja , basicamente, o de rotação da magnetização dentro do domínio.

Quando existem domínios de fechamento, o primeiro mecanismo de magnetização a acontecer é o de deslocamento de parede, conforme figura 5.3, com o crescimento dos domínios de fechamento favoravelmente orientados com o campo externo. Este processo acontece no reduzido volume da amostra ocupado pelos domínios de fechamento [Kronmüller *et al* 1979]. A seguir, ou mesmo simultaneamente, ocorre a magnetização pelo processo de rotação, em todo volume da amostra.

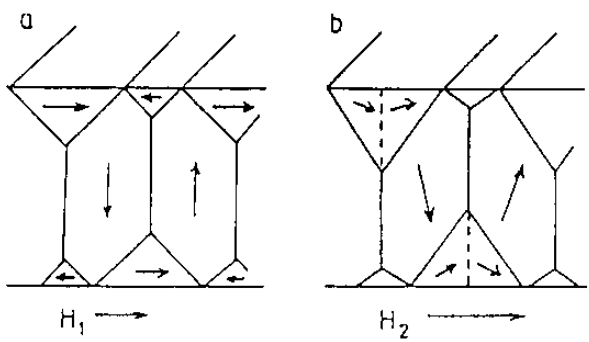

Figura 5.3: (a) Deslocamento de paredes dos domínios de fechamento; (b) rotação da magnetização

Considerando, então, um domínio no plano da amostra, com magnetização orientada segundo θ, sua susceptibilidade (χ), por rotação, será descrita pela equação (desenvolvida para a mesma situação, no caso dos cristais, [Cullity 1972]) por:

$$\chi = \frac{M_s^2}{2K_\mu} \sin^2 \theta \tag{5.1}$$

onde , conforme figura 5.4:

M_s é a magnetização de saturação
K_μ é a constante de anisotropia efetiva na direção θ
θ é o ângulo entre o vetor magnetização e o campo
(que é aplicado na direção do eixo da fita).

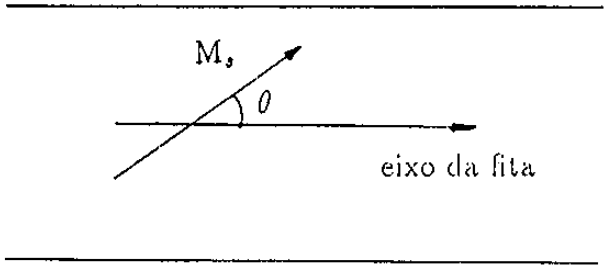

Figura 5.4

BIBLIOTECA CENTRAL

O ângulo θ quando a fita está sob tensão é determinado por um balanço entre as anisotropias magnetoelástica, de forma e estrutural.

A energia magnetoelástica, como vimos no capítulo 2, é descrita por :

$$E_\sigma = -\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \cos^2(\phi) \tag{5.2}$$

onde, como mostrado na figura 5.5:

ϕ é o ângulo entre a tensão efetiva e o eixo da amostra
σ é a tensão efetiva

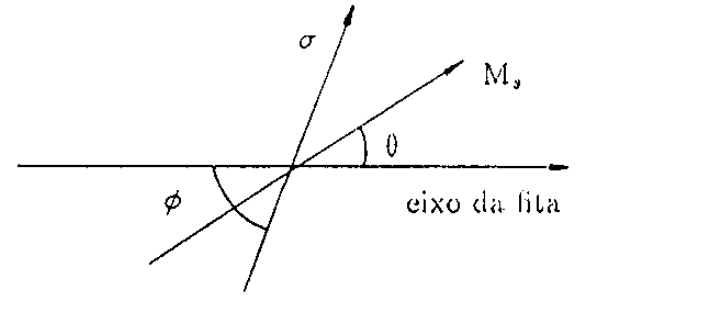

Figura 5.5

Como se sabe, uma tensão determina uma direção de fácil magnetização e não um sentido, mas, como estaremos considerando pequenas modificações do ângulo θ, para um específico domínio, isto é, um específico sentido para a magnetização, usaremos uma interpretação vetorial para as tensões. Assim , a tensão efetiva será :

$$\sigma = \sqrt{\left(\sigma_{\|}^{*} + \sigma_a\right)^2 + \sigma_{\perp}^{*\,2}} \tag{5.3}$$

onde

$\sigma_{\|}^{*}$ é a componente da tensão residual $(*)$,
paralela ao eixo da fita
σ_a é a tensão externa aplicada ao longo da fita e
$\sigma_{\perp}^{*}$ é a componente transversal da tensão residual

Com estas definições, o ângulo ϕ é dado por :

$$\sin\phi = \frac{\sigma_{\perp}^{*}}{\sigma}$$

As outras contribuições para a energia total podem ser compactadas na forma :

$$\mathrm{E}_{res} = \mathrm{K}_{\|}\cos^2\theta \tag{5.4}$$

onde $\mathrm{K}_{\|}$ inclui as constantes de anisotropia de forma, estrutural, e induzida, se for o caso, que favorecem a magnetização longitudinal, como vimos no capítulo 2.

Desta forma, a energia total fica :

$$\mathrm{E}_t = -\mathrm{K}_{\|}\cos^2\theta - \frac{3}{2}\lambda_s\sigma\cos^2(\phi-\theta) \tag{5.5}$$

A partir da minimização desta energia, vamos obter $\sin^2\theta$ diretamente, que é o que nos interessa. Derivando a energia total em relação a θ e igualando a zero, temos:

$$
\begin{aligned}
0 &= -\mathrm{K}_{\|} 2 \cdot \cos\theta(-\sin\theta) - \frac{3}{2}\lambda_s \sigma 2 \cdot \cos(\phi - \theta) - \cdot[\sin(\phi - \theta)] \cdot (-1) \\
&= \mathrm{K}_{\|} \sin 2\theta - \frac{3}{2}\lambda_s \sigma \sin 2(\phi - \theta) \\
&= \mathrm{K}_{\|} \sin 2\theta - \frac{3}{2}\lambda\sigma \left[\sin 2\phi \cos 2\theta - \cos 2\phi \sin 2\theta\right]
\end{aligned}
$$

fazendo

$$\mathrm{K}_{\|} + \frac{3}{2}\lambda_s \sigma \cos 2\phi = a$$

e

$$\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \sin 2\phi = b$$

teremos :

$$a \sin 2\theta = b \cos 2\theta$$

ou :

$$a^2 \sin^2 2\theta = b^2 \cos^2 2\theta$$

ou ainda :

$$\left(a^2 + b^2\right) \sin^2 2\theta = b^2$$

substituindo $\sin 2\theta = 2 \sin\theta \cos\theta$ teremos :

$$4 \sin^2\theta \cos^2\theta = \frac{b^2}{a^2 + b^2}$$

ou :

$$\sin^4\theta - \sin^2\theta + \frac{b^2}{4\left(a^2 + b^2\right)} = 0$$

e finalmente :

$$\sin^2\theta = \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\frac{a^2}{a^2+b^2}}$$

onde substituindo a e b temos :

$$\sin^2\theta = \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}\frac{K_{\parallel} + \frac{3}{2}\lambda_s\sigma\cos 2\phi}{\sqrt{K_{\parallel}^2 + 3\lambda_s\sigma K_{\parallel}\cos 2\phi + \frac{9}{4}\lambda_s^2\sigma^2}}$$

portanto :

$$\sin^2\theta = \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}\frac{K_{\parallel} + \frac{3}{2}\lambda_s\sigma\cos 2\phi}{K_{\mu}} \tag{5.6}$$

onde, identificamos a constante de anisotropia efetiva, na direção da magnetização (K_{μ}) como :

$$K_{\mu} = \sqrt{K_{\parallel}^2 + 3\lambda_s\sigma K_{\parallel}\cos 2\phi + \frac{9}{4}\lambda_s^2\sigma^2}$$

Substituindo 5.6 em 5.1 teremos :

$$\chi(\sigma) = \frac{M_s^2}{4K_{\mu}}\left[1 - \frac{K_{\parallel} + \frac{3}{2}\lambda_s\sigma\cos 2\phi}{K_{\mu}}\right] \tag{5.7}$$

onde consideramos o sinal menos, que corresponde a um mínimo da energia total.

A identificação de K_{μ} como fizemos, é um caso geral, que já foi feita por outros autores [Livingston e Morris 1985] em situações onde existam duas fontes de anisotropia, cujas dfm que definem formam um ângulo ϕ entre si.

De:

$$\sin\phi = \frac{\sigma_{\perp}^*}{\sigma}$$

teremos :

$$\cos 2\phi = 1 - 2\frac{\sigma_{\perp}^*}{\sigma}$$

5.2 Efeito da aplicação de um campo magnético longitudinal DC

Um campo longitudinal (H_{dc}) gira a magnetização do domínio no sentido do eixo da fita. Para incluir este efeito em nosso formalismo vamos definir uma tensão efetiva equivalente à aplicação de campo, através de :

$$\frac{H_{dc}M_s}{2} = \frac{3}{2}\lambda_s\sigma_H$$

teremos :

$$\sigma_H = \frac{H_{dc}M_s}{3\lambda_s}$$

Esta contribuição para a tensão total depende do sinal da magnetostrição da amostra. Para $\lambda_s > 0$, a tensão que provoca uma rotação da magnetização no sentido do eixo da fita é uma tensão longitudinal, logo, a tensão efetiva fica :

$$\sigma = \sqrt{\left(\sigma_{\parallel}^* + \sigma_a + \sigma_H\right)^2 + \sigma_{\perp}^{*\,2}}$$

No caso de $\lambda_s < 0$ a tensão equivalente será transversal.Assim

$$\sigma = \sqrt{\left(\sigma_{\parallel}^* + \sigma_a\right)^2 + \left(\sigma_H + \sigma_{\perp}^*\right)^2}$$

5.3 Considerações Gerais

A aplicação de tensões mecânicas tem efeitos completamente distintos sobre o padrão de domínios nas amostras com $\lambda_s > 0$ e $\lambda_s < 0$. No primeiro caso, as tensões, através da interação magnetoelástica, orientam os momentos magnéticos ao longo da direção da tensão. Em um primeiro estágio deve ocorrer uma rotação da magnetização para a direção longitudinal com o padrão de domínios inalterado, porém, a seguir, este padrão deve se alterar,

favorecendo a proliferação de domínios longitudinais. Para tensões aplicadas suficientemente altas, tem sido observado [Schroeder *et al* 1978, Dong e Kronmüller 1982, Dong *et al* 1982] que :

(a) os domínios transversais desaparecem, dando lugar a múltiplos domínios longitudinais, e a seguir,

(b) os múltiplos domínios fundem-se em grandes domínios, portanto diminuindo o número de paredes.

Ao longo deste processo, a anisotropia de forma pode ser alterada. Uma vez que a magnetização longitudinal não implica em cargas magnéticas superficiais, não há formação de domínios de fechamento. A anisotropia de um-íon pode passar a ser importante pois o argumento de média volumétrica nula fica enfraquecido pelo ordenamento dos domínios. A energia associada ao ordenamento de pares é alterada pelas modificações locais da direção da magnetização.

No caso de $\lambda_s < 0$ a rotação inicial é na direção transversal. Após certo ponto da magnetização, o padrão de domínios inicial começa a transformar-se, passando a predominar os domínios transversais, consequentemente induzindo a formação de domínios de fechamento. Estes domínios transversais são bem mais estreitos do que aqueles longitudinais obtidos nas amostras com $\lambda_s > 0$. De forma análoga ao primeiro caso, são alteradas também as outras contribuições para a anisotropia efetiva.

Estas alterações na anisotropia efetiva não são explicitamente consideradas no modelo. O $K_{||}$ considerado é independente da tensão σ_a e representa a anisotropia inicial longitudinal, na situação em que só ocorre a rotação da magnetização dentro dos domínios, mantido o padrão inicial. Nos casos em que houver modificações no padrão de domínios por aplicação de tensão ou campo, $K_{||}$ deve variar.

Alguns resultados teóricos, calculados a partir da equação 5.7 são mostrados a seguir, para amostras com $\lambda = -0,6 \times 10^{-6}$, $\lambda = -1 \times 10^{-7}$ e

$\lambda = 1,3 \times 10^{-6}$, tensões residuais de σ=30MPa e $K_{\|}$=150,15 e 650 erg/cm^3 respectivamente, nas figuras 5.6, 5.7 e 5.8, onde, de cima para baixo as curvas são caracterizadas por crescentes intensidades de campo aplicado (H_{dc}). O valor de σ para a família $(Fe_{1-x}Co_x)_{75}Si_{15}B_{10}$ é praticamente independente da composição [Obi 1979] e permite uma avaliação do valor de $K_{\|}$, de acordo com $K_{\|} \approx \lambda\sigma$.

Os comportamentos das curvas concordam qualitativamente com os resultados experimentais que serão apresentados mais adiante. A presença ou não de um máximo na curva H_{dc}=0 está relacionada com a relação entre as tensões residuais $\sigma^*_{\perp}$ e $\sigma^*_{\|}$.

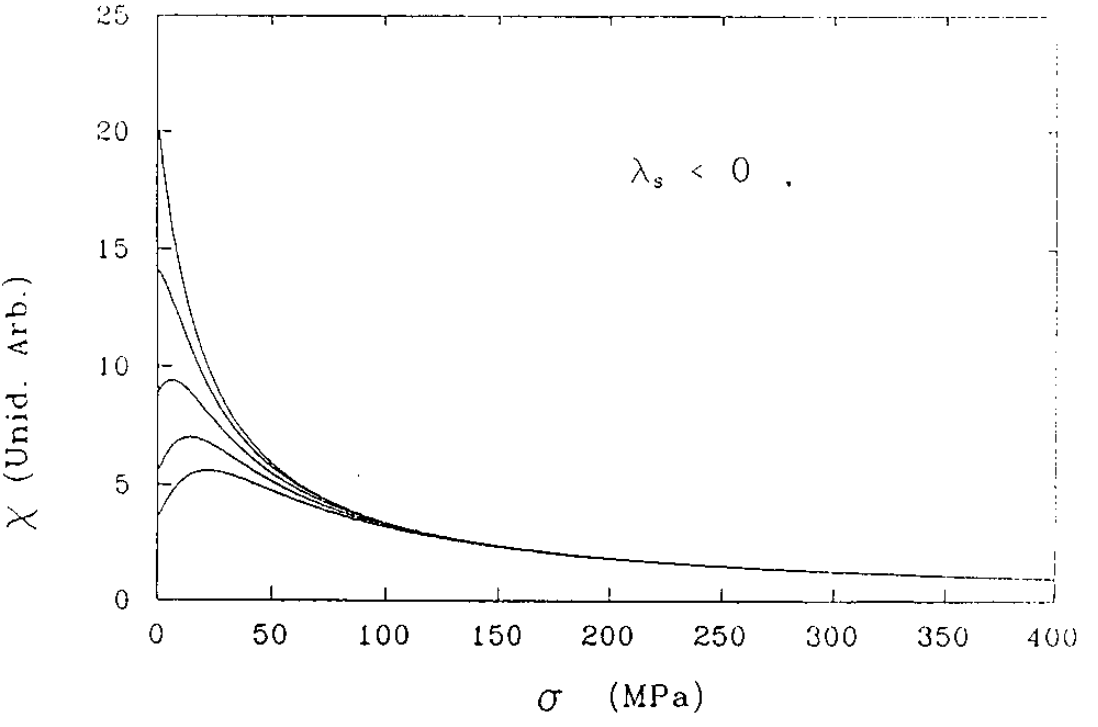

Figura 5.6: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = -0,6 \times 10^{-6}$, para crescentes intensidades de σ_H

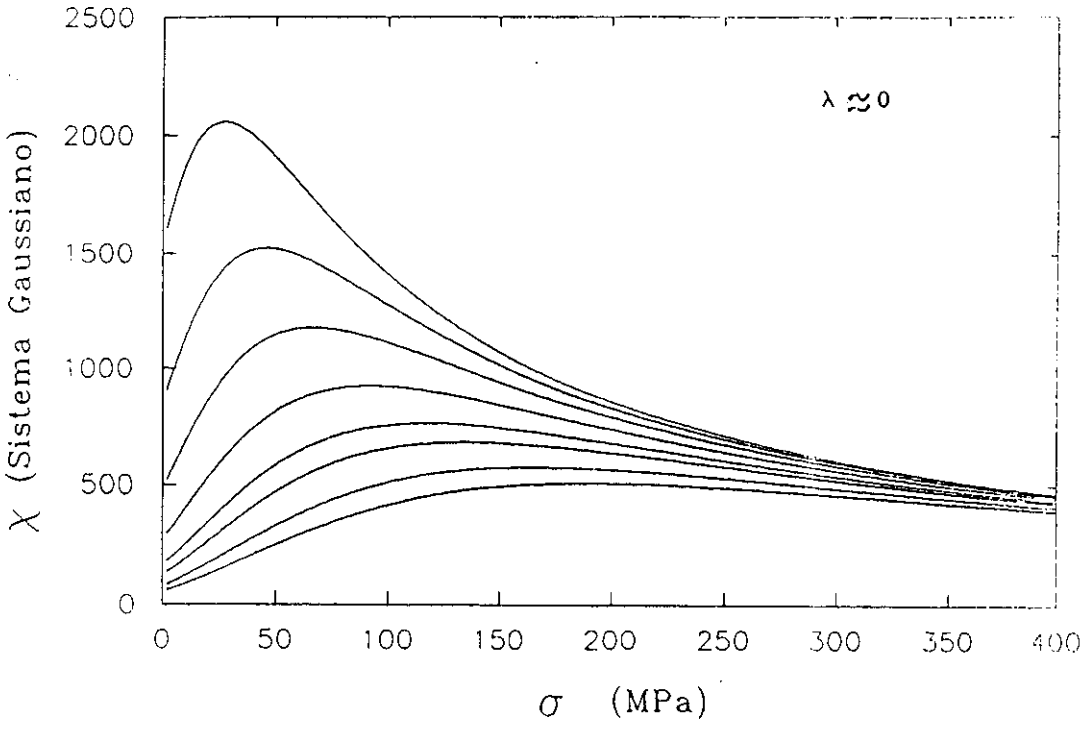

Figura 5.7: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = -1 \times 10^{-7}$, para crescentes intensidades de σ_H

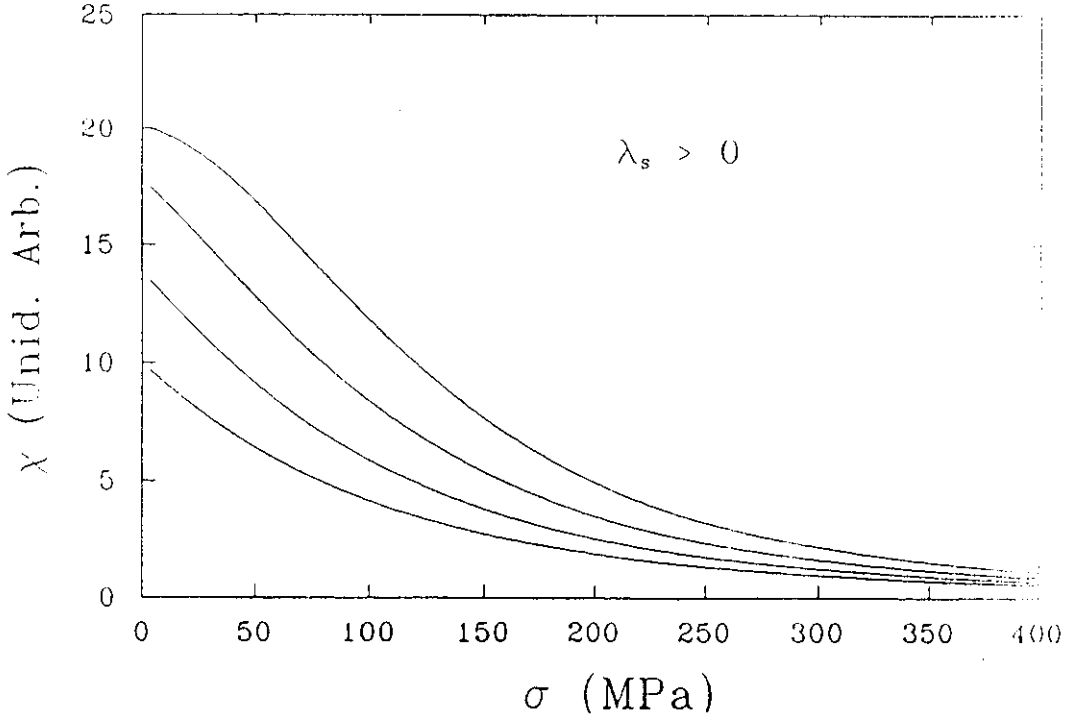

Figura 5.8: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = 1.3 \times 10^{-6}$, para crescentes intensidades de σ_H

Os efeitos do aumento de $K_{||}$ no comportamento da susceptibilidade podem ser vistos nas figuras 5.9, 5.10 e 5.11. Mantidas as tensões iniciais, o aumento de $K_{||}$ tem o efeito de deslocar o máximo das curvas para a direita, no caso de $\lambda < 0$ e para a esquerda quando $\lambda > 0$. Quanto menor o valor de λ_s, maiores modificações são impostas pelo crescimento de $K_{||}$. A susceptibilidade para $\sigma_a = 0$, em qualquer caso, cai rapidamente com $K_{||}$. Fica claro que a taxa de decaimento é função do crescimento de $K_{||}$, que traduz o aumento da anisotropia induzida.

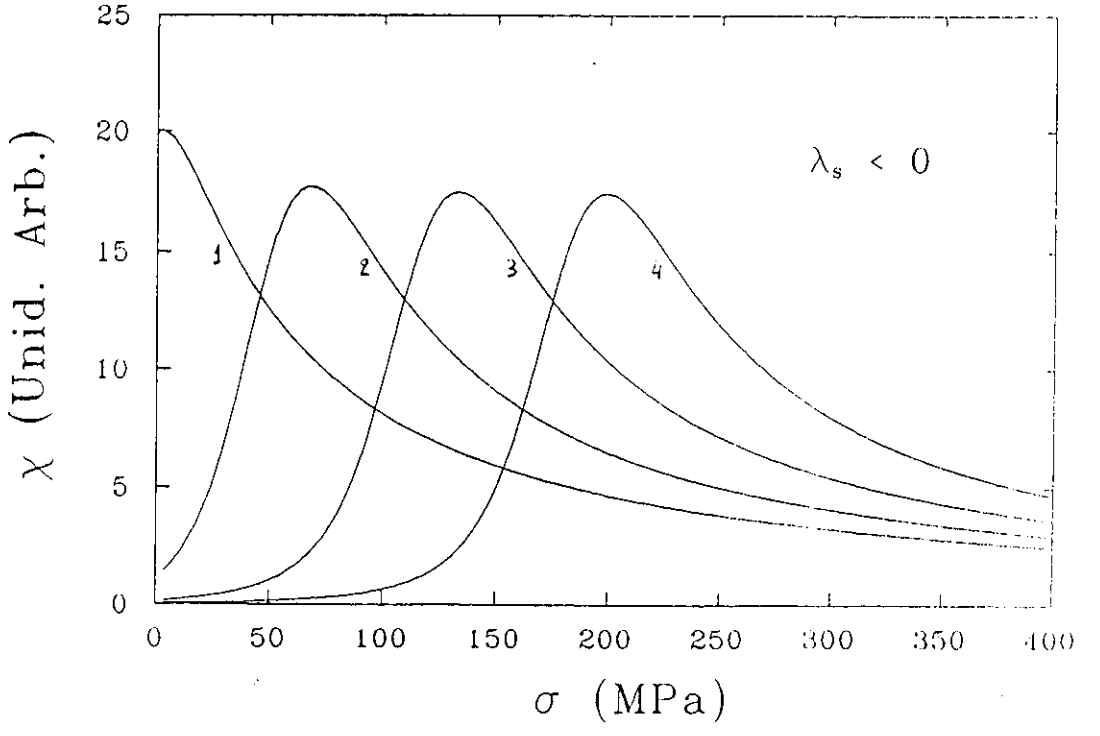

Figura 5.9: Curvas calculadas para a amostra com $\lambda = -0,6 \times 10^{-6}$ para diferentes valores de $K_{||}$: 1) 30, 2) 630, 3) 1230, 4) 1830 erg/cm^3. $\sigma_{||} = 30$ e $\sigma_{\perp} = 20$ MPa.

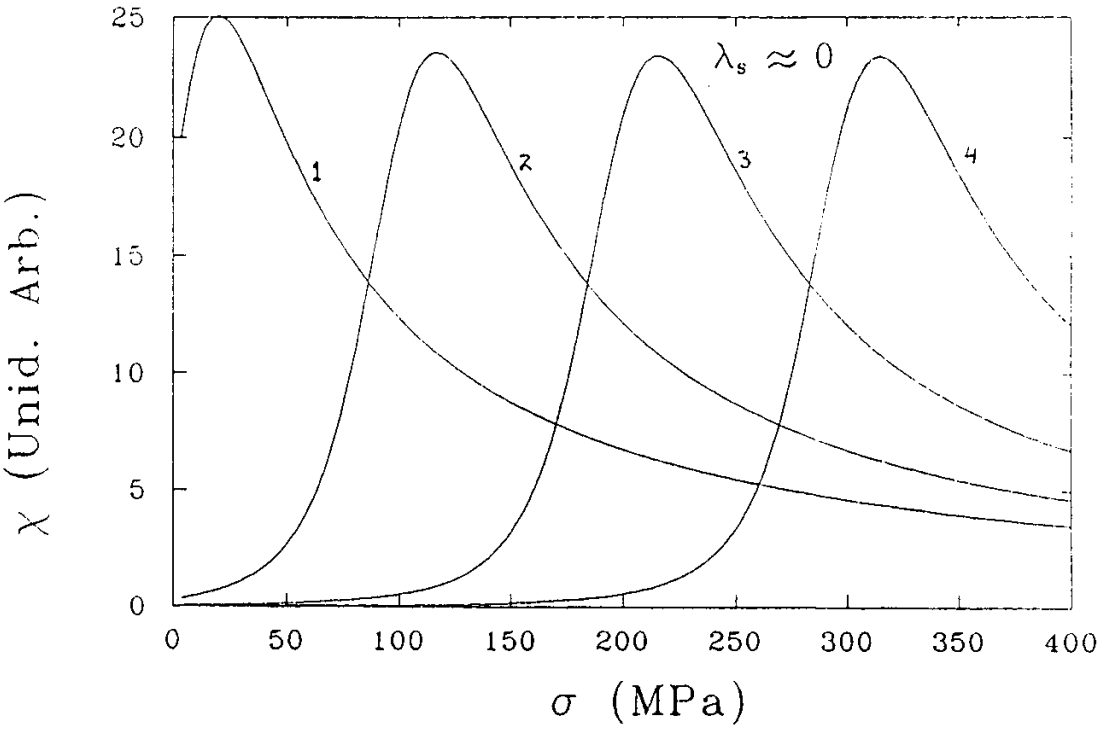

Figura 5.10: Curvas calculadas para a amostra com $\lambda = -1 \times 10^{-7}$ para diferentes valores de $K_{||}$: 1) 30, 2) 180, 3) 330, 4) 480 erg/cm^3. $\sigma_{||} = 30$ e

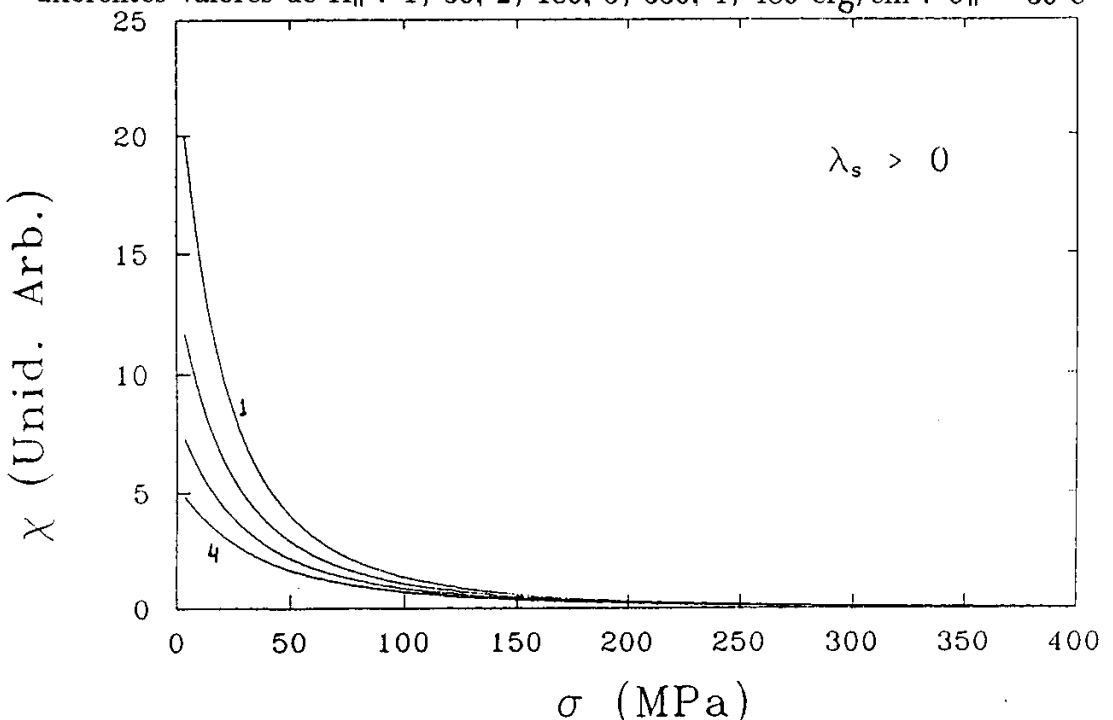

Figura 5.11: Curvas calculadas para a amostra com $\lambda = 1 \times 10^{-6}$ para diferentes valores de $K_{||}$: 1) 500, 2) 700, 3) 900, 4) 1100 erg/cm^3. $\sigma_{||} = 30$ e $\sigma_{\perp} = 20$ MPa.

O aumento de $K_{||}$ também é verificado, por exemplo, quando as amostras são tratadas termicamente. Nestas circunstâncias, uma queda da susceptibilidade é associada ao predomínio do mecanismo de magnetização por deslocamento de paredes, às custas do mecanismo de rotação [Livingston *et al* 1983]. Esta queda é mais rápida quando o tratamento térmico é feito em temperatura mais alta ou, com aplicação de campo magnético [Cruz Filho *et al* 1991].

Capítulo 6

Métodos Experimentais

6.1 Método de Medida do "Aftereffect"

O método de medida da relaxação da permeabilidade que utilizamos em nosso laboratório é o método impulsivo [Allia et al 1980, Sato Turtelli e Vinai 1990], que consiste em :

i. Através de uma bobina, chamada bobina de campo, aplica-se um campo magnético senoidal He sobre a amostra. Sua amplitude deve produzir uma adequada oscilação das paredes de domínios (o termo "adequada" será esclarecido adiante). O campo He que normalmente utilizamos tem frequência alta (90 KHz), para evitar interferências , obtermos tempos de resposta pequenos e um alto sinal de indução magnética (como nossas amostras tem alta resistividade as perdas serão baixas, mesmo em alta frequência), sendo gerado por um amplificador "LOCK-IN" PAR 124A.

ii. Mede-se a indução magnética B através de uma bobina "pick-up", coaxial com a bobina de campo. Esta medida é feita diretamente através de um osciloscópio.

iii. Por meio de uma terceira bobina coaxial, chamada: bobina de pulso, aplica-se um pulso rápido, de duração $\Delta t = 10^{-5}$s e amplitude de até 2 Oe. Esta amplitude deve ser suficiente para provocar drásticas modificações na estrutura de domínios da amostra.

iv. Após cada pulso, o sinal da "pick-up" é amplificado e retificado pelo "Lock-in" e enviado a um registrador X vs.t (H.P. 7100 BM) ou a um analizador de sinais H.P. 35660 A. A evolução temporal de B é acompanhada em intervalos fixos, onde os limites t_1 e t_2 são mantidos constantes. Normalmente temos utilizado t_1= 1s e t_2= 11s.

O diagrama de bloco do sistema de medida é mostrado na figura 6.1.

Devido à multiplicidade de configurações de domínios quase equivalentes energeticamente, com respostas ao campo levemente diferentes, todo decaimento medido (ΔB) é, na verdade, resultado de uma média de diversas medidas.

O valor de $\Delta\mu/\mu$ é obtido calculando-se ΔB/B , pois, na região inicial, a relação entre B e H_e é linear :

$$B = \mu \cdot H_e \qquad \text{logo} \qquad \Delta B = \Delta\mu \cdot H_e \text{ e}$$

$$\boxed{\frac{\Delta B}{B} = \frac{\Delta\mu}{\mu}}$$

Diferentes amostras ou amostras de mesma composição, tratadas ou produzidas de diferentes maneiras, apresentam diferentes valores de permeabilidade. Para podermos comparar medidas de "aftereffect" é portanto necessário estabelecer um critério de comparação. Para isto toma-se o valor de He que corresponde ao máximo da curva ΔB vs B pois, nestas condições, a amplitude de oscilação das paredes (ξ) tem uma relação fixa com sua espessura, para qualquer caso. A relação é $\xi = 0.45\rho$ onde 2ρ é a espessura da parede. Assim, medidas de "aftereffect" com He no ponto em que as curvas ΔB vs B apresentam um máximo, são comparáveis entre si.

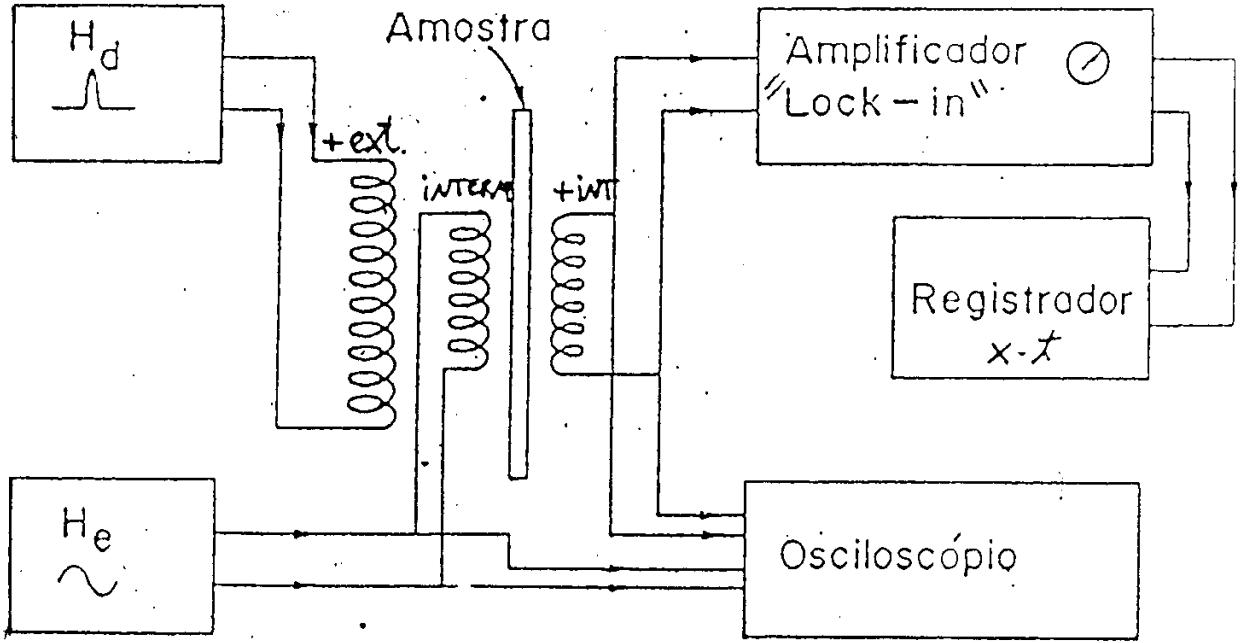

Figura 6.1: Diagrama de Blocos do Equipamento

6.2 Medidas de Susceptibilidade Magnética

Medidas da dependência da susceptibilidade com a tensão foram efetuadas em temperatura ambiente em amostras "as cast" de composição $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$ ($2 < x < 40$).

Na tabela 6.1 são mostrados os valores da magnetização espontânea(M_s) e da constante de magnetostrição (λ_s).

x	$M_s(\frac{emu}{cm^3})$	$\lambda_s(\times 10^{-6})$)
2	620,70	-2,0
4	644,58	-0,6
4,6	668,45	-0,1
6	652,52	1,3
10	684,36	4,5
20	803,72	11,5
30	875,35	17,4
40	946,97	24,4

Tabela 6.1: Magnetização espontânea e magnetostrição λ_s para amostras "as cast" de composição $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$

As medidas de susceptibilidade foram feitas com o mesmo equipamento utilizado nas medidas de "aftereffect" da permeabilidade magnética. Para as medidas, aplica-se um campo senoidal (H_e) sobre a amostra e mede-se a indução. Isto é feito para , pelo menos cinco intensidades de campo, na zona de campos baixos, de onde obtem-se uma reta (B vs.H_e), cuja inclinação é proporcional à susceptibilidade inicial da amostra.

Para a aplicação de tensões longitudinais utilizamos um dispositivo onde um extremo da amostra é mantido fixo e ao outro são acoplados pesos adequados à secção reta de cada amostra, afim de obtermos tensões pré-determinadas.

Os campos H_{dc} durante as medidas, foram aplicados por um gerador de pulsos H.P.1900A que permite aplicar na bobina de pulsos uma tensão constante de até 1,5V, o que implica em campos de até 2 Oe no nosso sistema de medidas.

Capítulo 7

Dependência da Susceptibilidade com Tensão e Campo

A técnica de medida que desenvolvemos, impondo mudanças na estrutura de domínios, através da aplicação de campo longitudinal, tem a vantagem de manter as amostras em seu estado metaestável original, não alterando de forma irreversível o estado de tensões internas, o ordenamento direcional dos pares atômicos e a constante de magnetostrição.

As figuras 7.1 a 7.8, mostram os resultados experimentais de susceptibilidade magnética em função da tensão mecânica para as amostras $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$, com x = 2 ; 4 ; 4,6 ; 6 ; 10 ; 20 ; 30 e 40, respectivamente.

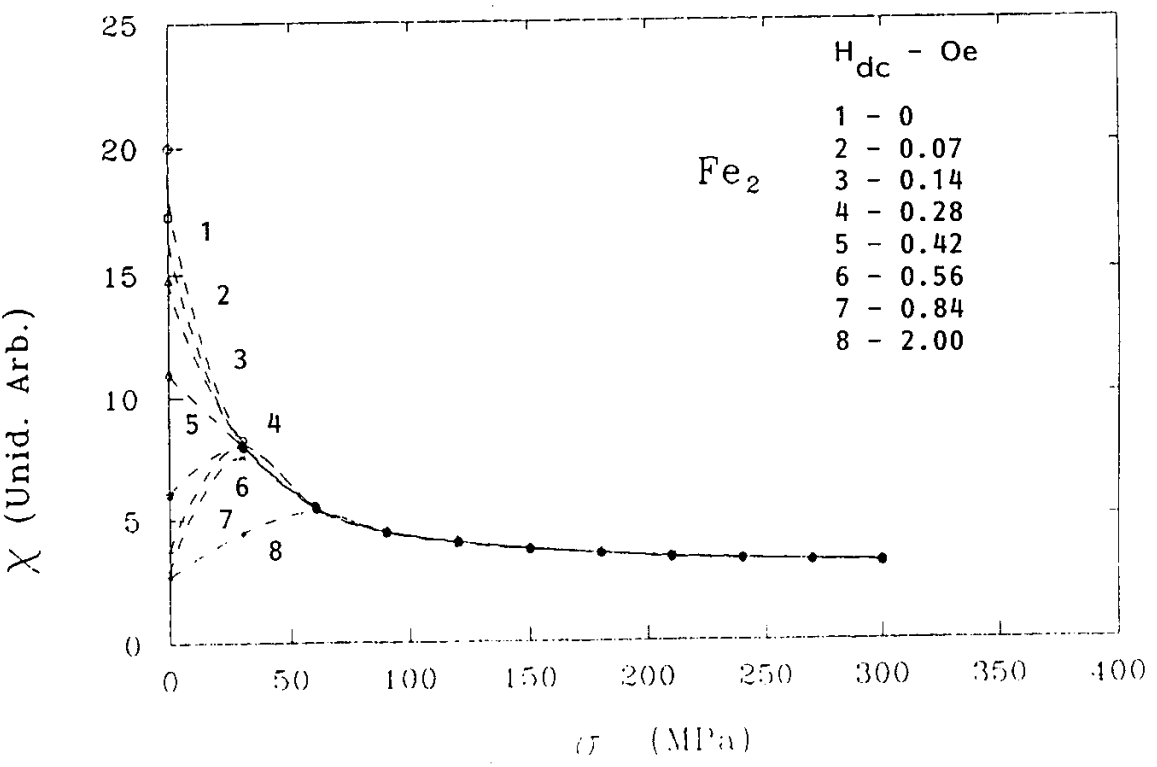

Figura 7.1: Resultados experimentais para amostra Fe_2, para crescentes valores de H_{dc}.

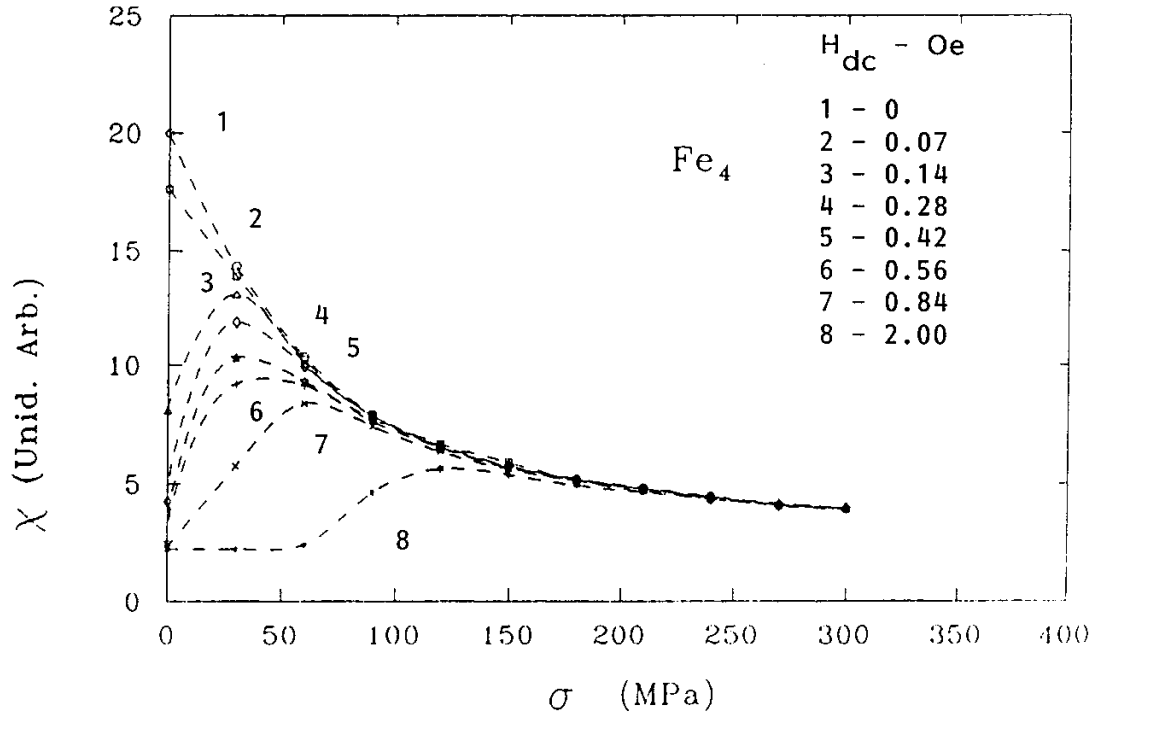

Figura 7.2: Resultados experimentais para amostra Fe_4, para crescentes valores de H_{dc}.

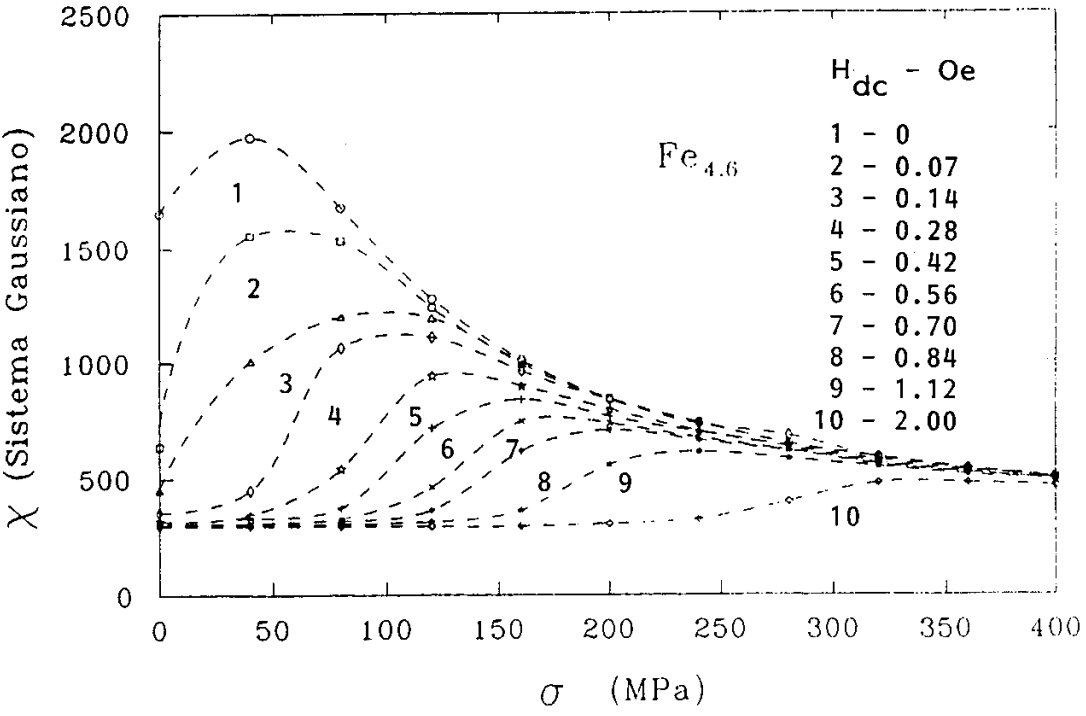

Figura 7.3: Resultados experimentais para amostra $Fe_{4.6}$, para crescentes valores de H_{dc}.

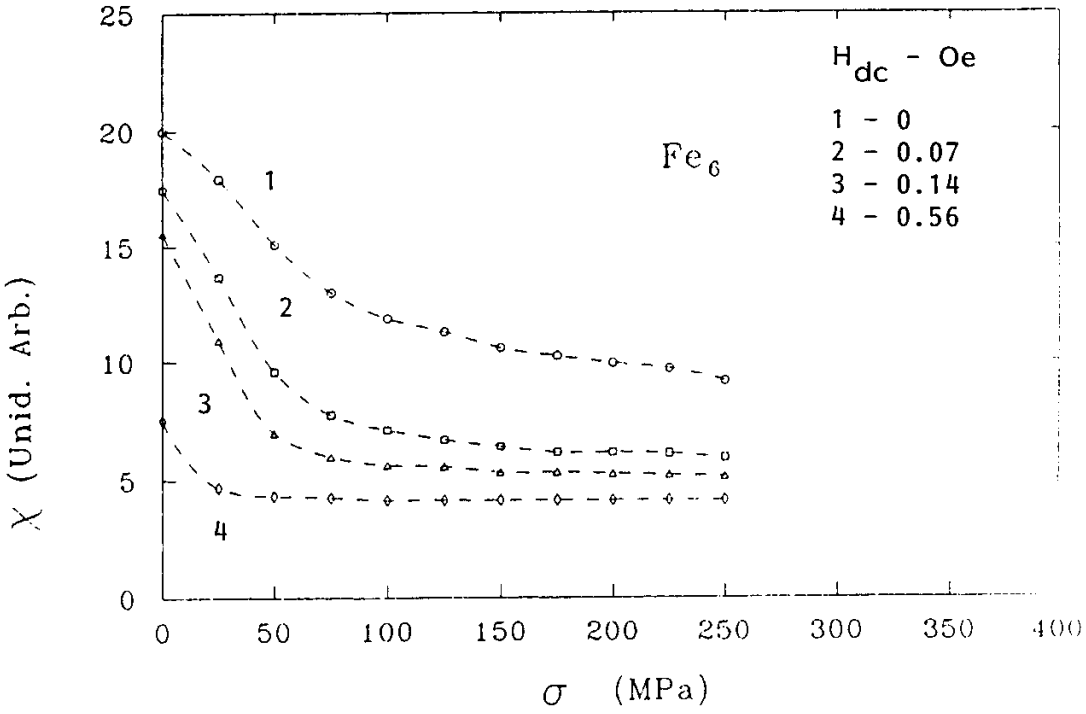

Figura 7.4: Resultados experimentais para amostra Fe_6, para crescentes valores de H_{dc}.

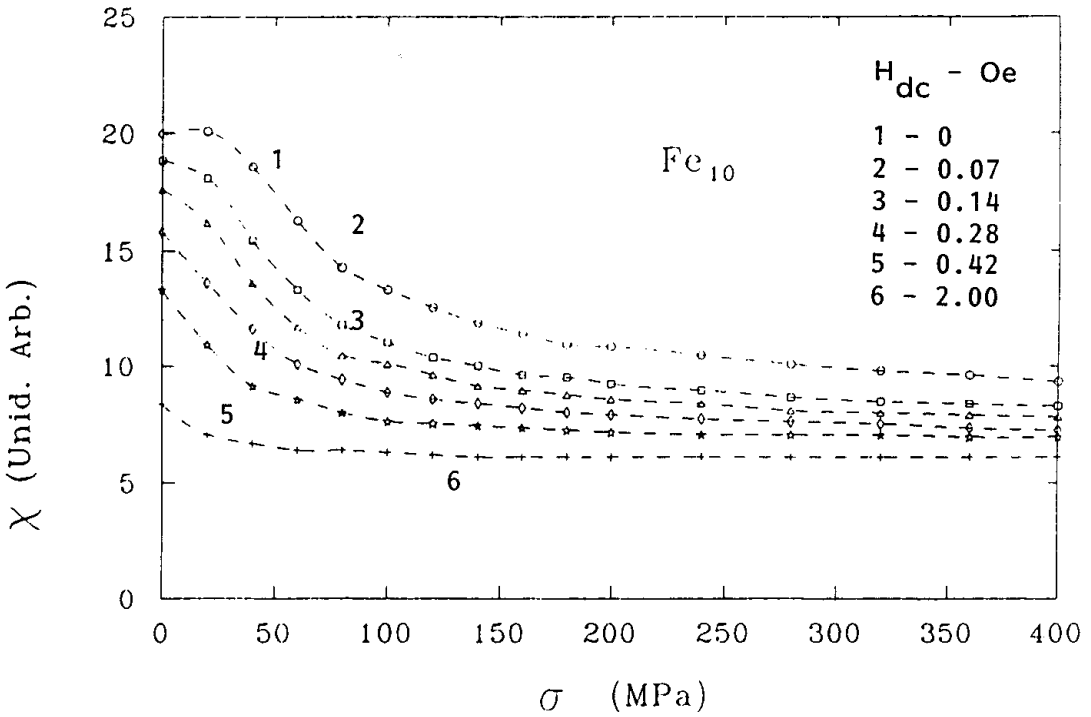

Figura 7.5: Resultados experimentais para amostra Fe_{10}, para crescentes valores de H_{dc}.

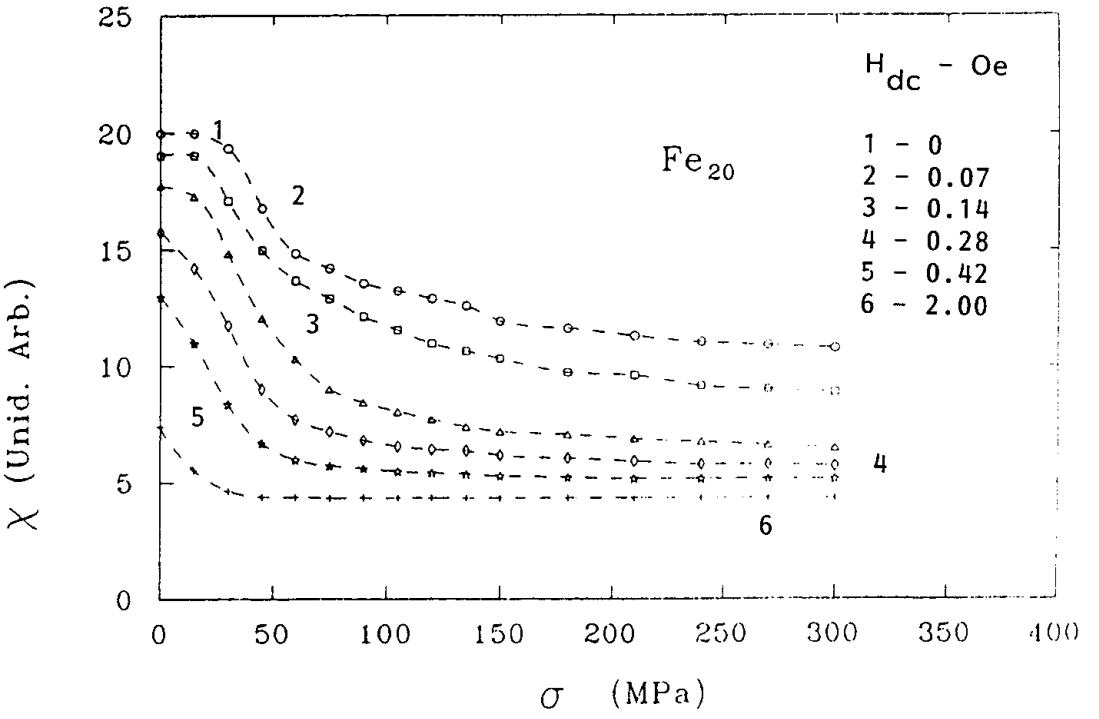

Figura 7.6: Resultados experimentais para amostra Fe_{20}, para crescentes valores de H_{dc}.

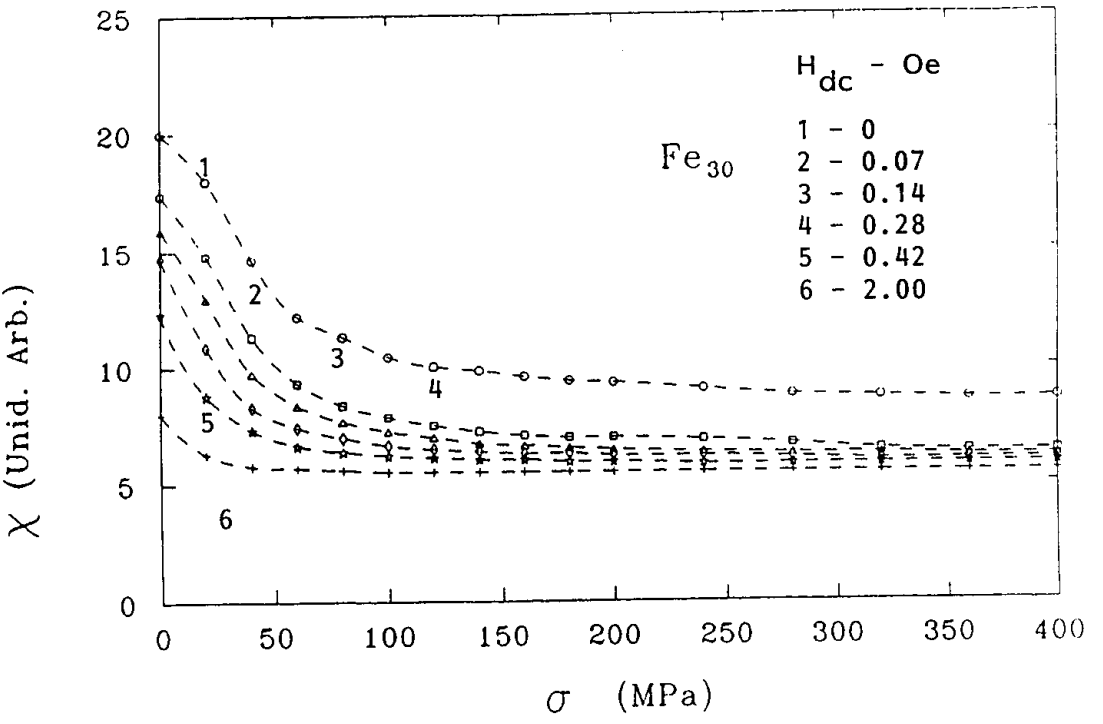

Figura 7.7: Resultados experimentais para amostra Fe_{30}, para crescentes valores de H_{dc}.

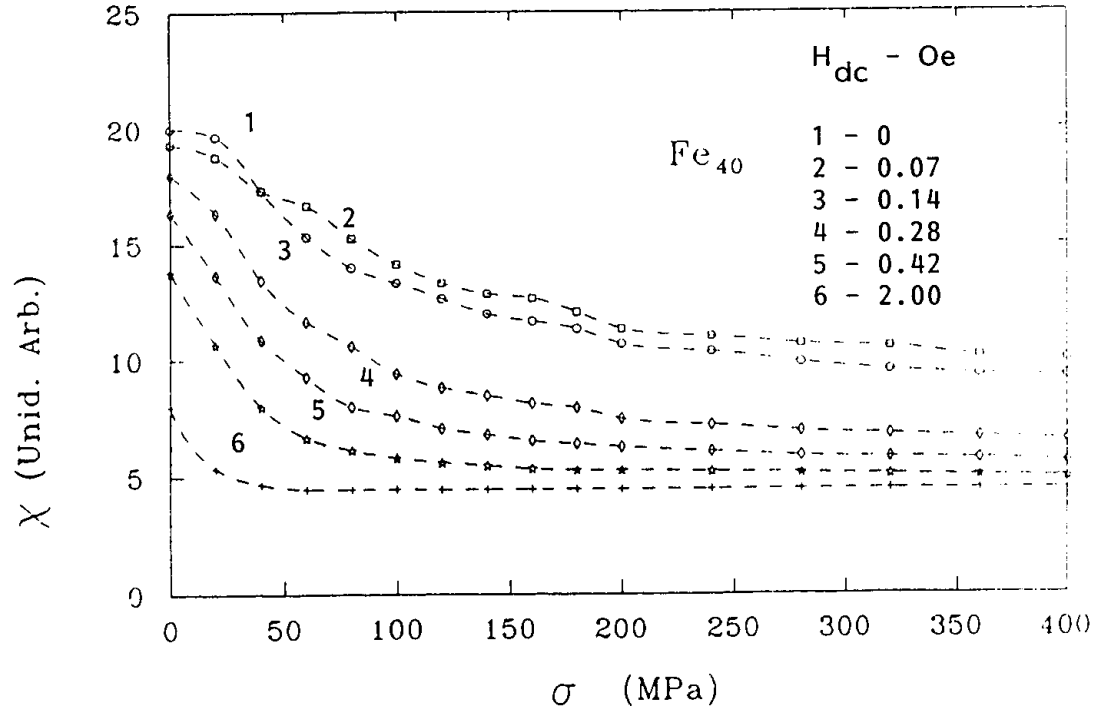

Figura 7.8: Resultados experimentais para amostra Fe_{40}, para crescentes valores de H_{dc}.

As linhas foram obtidas simplesmente unindo-se os pontos. Níveis crescentes de H_{dc} caracterizam as diversas curvas de cima para baixo. Em todos os casos, a curva mais alta corresponde a $H_{dc}= 0$.

Observa-se nas figuras 7.1 e 7.2 referentes às amostras Fe_2 e Fe_4 com $\lambda_s < 0$ e na figura 7.3 para a amostra $Fe_{4.6}$ com $\lambda_s \approx 0$, a presença de um máximo nas curvas. No caso da amostra $Fe_{4.6}$, já a partir da situação inicial ($H_{dc} = 0$) observa-se a presença de um máximo, enquanto que para as amostras Fe_2 e Fe_4 aparecem máximos a partir de valores específicos de H_{dc}. Este máximo desloca-se para tensões maiores e tem sua intensidade reduzida, a medida que aumenta o campo aplicado. Isto mostra que a intensidade de H_{dc} onde começa a aparecer um máximo é circunstancial, pois depende da distribuição dos domínios longitudinais e transversais presentes, ou seja, da distribuição inicial de tensões internas.

Para regiões de altas tensões as curvas tornam-se coincidentes. Isto ocorre para menores tensões nas amostras com maiores constantes de magnetostrição.

A coincidência das diversas curvas é entendida como a superposição dos efeitos da tensão e do campo. Neste caso ($\lambda_s < 0$) a tensão longitudinal promove o desenvolvimento de domínios transversais, enquanto que o campo atua favorecendo os domínios longitudinais. Quanto maior o campo aplicado, maior a tensão necessária para compensar seu efeito e a coincidência ocorre em tensões maiores. Este efeito é mais facilmente verificado nas curvas correspondentes à amostra $Fe_{4.6}$ que, por apresentar menor constante de magnetostrição, precisa de maiores tensões para que aconteçam as modificações nos padrões de domínios.

Para grandes intensidades de H_{dc} a susceptibilidade é fortemente reduzida, e permanece constante até altas tensões, passando então a crescer novamente. Quanto maior o campo aplicado, maior a tensão necessária para que isto ocorra. Este efeito é verificado nas últimas curvas obtidas para as amostras Fe_4 e $Fe_{4.6}$.

Para as amostras com magnetostrição positiva (x>4.6) (figuras 7.4 a 7.8)

a tensão faz a susceptibilidade diminuir. Quando sujeitas também a campos magnéticos estáticos a susceptibilidade é ainda menor, ou seja, os efeitos da aplicação de tensão e campo se somam, ambos promovendo a anisotropia longitudinal, e a magnetização se processa, cada vez mais, por deslocamentos de paredes de 180° . Neste caso, é difícil separar as diferentes contribuições. Todos os conjuntos de resultados apresentam comportamentos bastante parecidos, e algumas pequenas diferenças no comportamento do início da curva, isto é, para σ_a próximo de zero, podem ser atribuídas a diferentes estados de tensão inicial das amostras.

Como podemos observar, os comportamentos da susceptibilidade em função da tensão são marcadamente diferentes quando as amostras apresentam magnetostrição positiva ou negativa. Como consequência, através destas medidas é possível saber se uma amostra tem magnetostrição positiva ou negativa e permite avaliar o valor de λ_s (se negativa), uma vez que outros parâmetros sejam conhecidos.

A partir da equação:

$$\chi(\sigma) = \frac{M_s^2}{4K_\mu}\left[1 - \frac{\left[K_{||} + \frac{3}{2}\lambda_s \sigma \cos^2\phi\right]}{K_\mu}\right]$$

obtivemos para as amostras com $\lambda_s > 0$ o conjunto de curvas da figura 5.8 que mostra o andamento geral em função de tensão e campo.

Neste caso, não era de se esperar que as curvas teóricas descrevessem bem os resultados experimentais, tendo em vista que o modelo leva em conta somente o mecanismo de rotação da magnetização. Esta rotação não é promovida nem pela tensão nem pelo campo, mas poderá ser obtida por um tratamento térmico com campo transversal. Este estudo ficará como sugestão para futuros trabalhos.

Na figura 7.9 são mostradas as curvas calculadas para a amostra Fe_2 ($\lambda_s = -2 \times 10^{-6}$). Neste caso, vemos que há uma boa concordância entre o andamento geral das curvas e os resultados experimentais mostrados na figura 7.1. Observa-se porém, que os valores máximos obtidos experimental-

mente deslocam-se mais rapidamente para maiores tensões do que os obtidos teoricamente. Isto foi atribuído ao fato de que na obtenção das curvas teóricas foi considerado o valor de $K_{\|}$ constante. O deslocamento mais rápido nos resultados experimentais, parece indicar que há um aumento do valor de $K_{\|}$ com o campo. Este efeito do campo é rapidamente compensado pela tensão externa e as curvas atingem os mesmos valores de χ desde tensões baixas. Como λ_s é grande e negativo, tensões relativamente pequenas são suficientes para que a energia magnetoelástica ($\frac{3}{2}\lambda\sigma$), que favorece o aparecimento de domínios transversais, compense o efeito do campo.

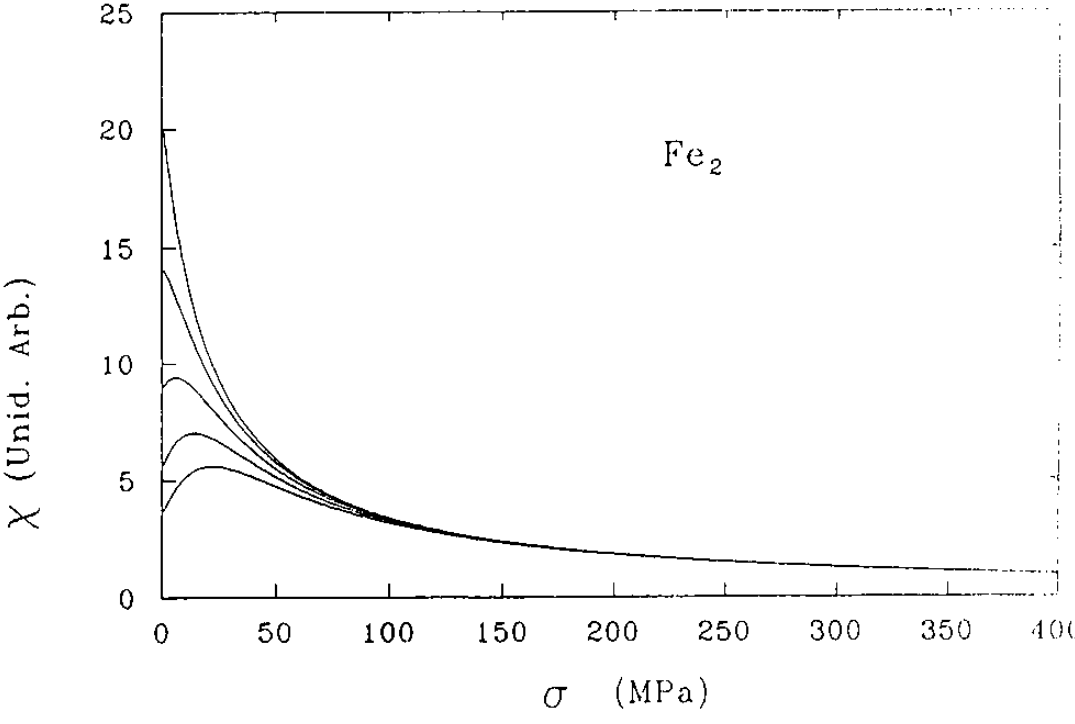

Figura 7.9: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = -2 \times 10^{-6}$, para crescentes intensidades de σ_H

Para a amostra Fe_4 ($\lambda_s = -0.6 \times 10^{-6}$) temos um comportamento qualitativo semelhante ao Fe_2 como pode ser visto na figura 7.1. O fato de a magnetostrição ser menor só altera o intervalo de tensões onde as modificações no comportamento da susceptibilidade são observadas. Aqui, novamente observamos que as curvas experimentais (figura 7.2) deslocam-se mais rapidamente para altas tensões do que aquelas teóricas com $K_{||}$ constante. A influência de aumentar o $K_{||}$ é deslocar os máximos das curvas para a direita como vimos no capítulo 5, figuras 5.9 e 5.10. A curva experimental (figura 7.2) correspondente a H_{dc}=2 Oe deixa nítida a influência do crescimento de $K_{||}$.

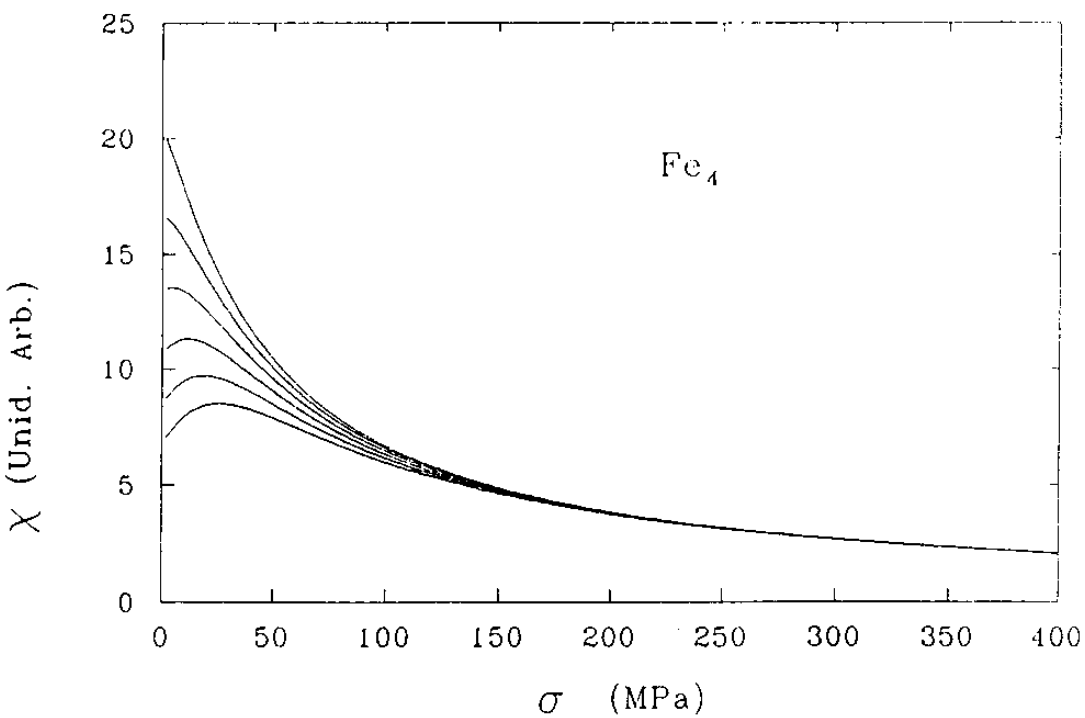

Figura 7.10: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = -0,6 \times 10^{-6}$, para crescentes intensidades de σ_H

Este mesmo comportamento é mais evidente nos resultados obtidos para a amostra $Fe_{4.6}$, como pode ser visto na figura 7.11 . Neste caso a coincidência das curvas ocorre para tensões bem mais altas como era esperado, uma vez que a resposta magnetoelástica desta amostra é menor (menor λ_s). Comparando-se as figuras 7.11 e 7.3 observamos que o deslocamento dos máximos das curvas experimentais em relação aos teóricos é mais acentuado para valores altos de campo aplicado, traduzindo a importância do processo de ordenamento de pares neste caso.

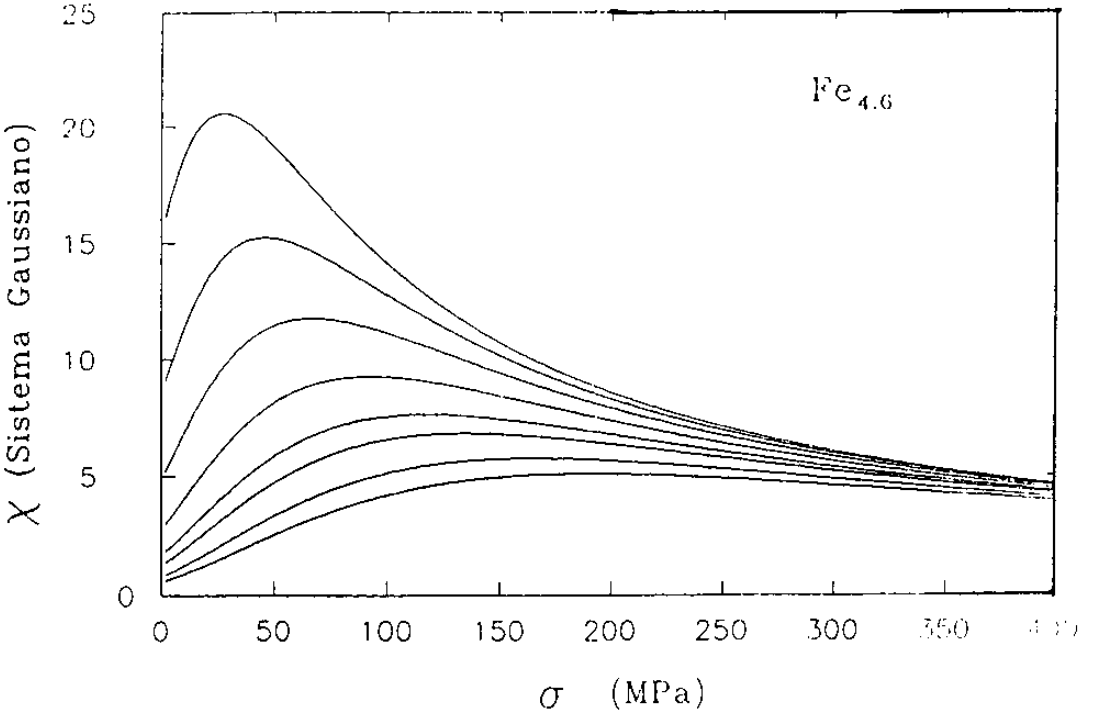

Figura 7.11: Curvas calculadas a partir da equação 5.7 para amostras com $\lambda = -1 \times 10^{-7}$, para crescentes intensidades de σ_H

Uma vez que as alterações são mais evidentes nesta amostra, nela concentramos nossa atenção e ajustamos quantitativamente os resultados experimentais utilizando a expressão desenvolvida para $\chi(s)$. O programa de ajuste é baseado no método Marquart-Levenberg. Dois ajustes foram feitos:

(a) Assumindo que todo o efeito do campo possa ser levado em consideração através de uma contribuição magnetostritiva representada pela tensão σ_H. Para este ajuste usamos: $K_{||}$= 15 erg/cm^3 e as tensões residuais σ^*=30MPa [Obi 1979]

Os resultados obtidos estão mostrados na figura 7.12.

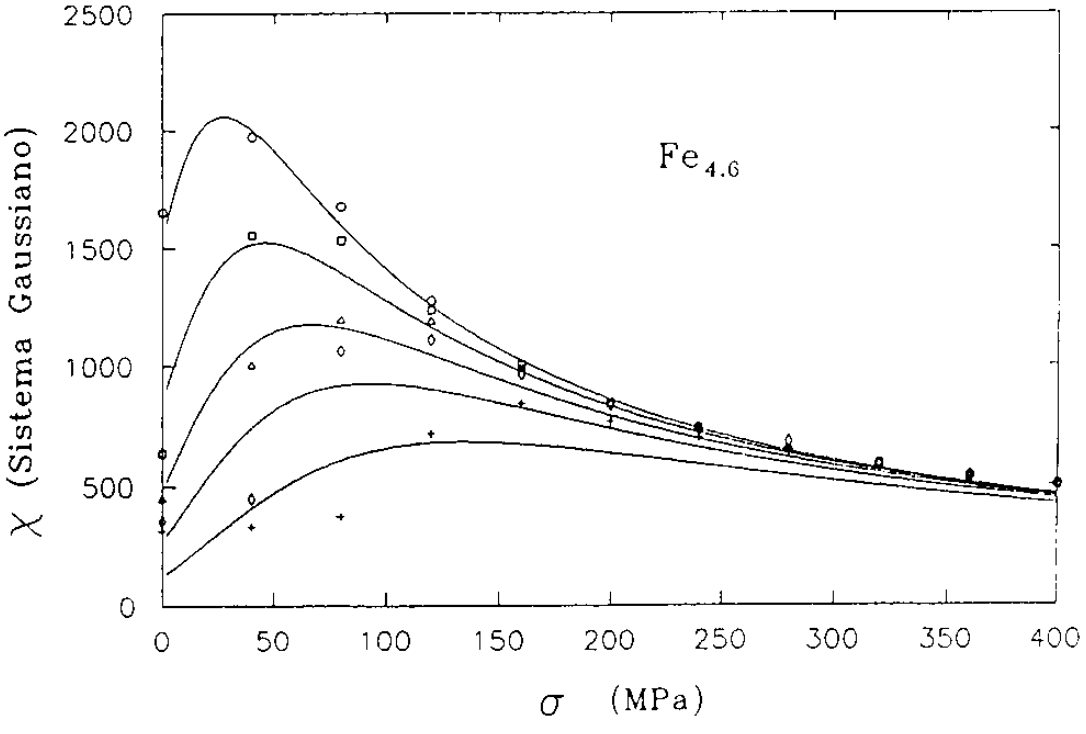

Figura 7.12: Curvas ajustadas para amostra $Fe_{4.6}$, mantendo $K_{||}$ fixo = 15 erg/cm^3 (ajuste (a)).

Vemos que o modelo reproduz bem as primeiras curvas, mas deixa a desejar nas demais. Isto é facilmente explicado, pois a influência das variações de $K_{||}$ é maior. quanto menor os valores de λ_s, como visto no capítulo 5. No caso de $\lambda_s \approx 0$, uma pequena variação de $K_{||}$ já implica em drásticas mudanças no mecanismo de magnetização predominante. As reduções nas intensidades com o campo aplicado estão de acordo com o valor de $\sigma_H = 20$ MPa calculado de :

$$M_s \cdot H_{dc} = 3 \cdot \lambda_s \sigma$$

com $M_s = 700$ emu/cm^3
$H_{dc} = 0.1$ Oe e
$\lambda_s = -1 \times 10^{-7}$

entretanto, como os máximos experimentais estão deslocados para a direita, em relação aos teóricos, resolvemos efetuar novo ajuste,

(b) onde permitimos variações de $K_{||}$ pois, como vimos no capítulo 5, o aumento de $K_{||}$ implica no deslocamento dos máximos para tensões mais altas sem alterar as intensidades relativas dos mesmos.

Como resultado, obtivemos o conjunto mostrado na figura 7.13, onde podemos observar uma melhora sensível nas condições de ajuste. Os parâmetros que caracterizam este ajuste estão mostrados na tabela 7.1.

Estes resultados indicam que a contribuição do campo magnético longitudinal DC para a anisotropia magnética efetiva têm pelo menos duas componentes:

i. uma componente magnetostritiva, ou seja, a aplicação de campo gera tensões internas (σ_H), e outra
ii. onde estão incluidos os efeitos de ordenamento de pares e das mudanças no efeito forma ($K_{||}$).

$H_{dc}(V)$	$\sigma_{\parallel} \times 10^7 dyna/cm^2$	$\sigma_{\perp} \times 10^7 dyna/cm^2$	$K_{\parallel} erg/cm^3$
0	36,08	34,95	15,00
0,1	36,08	54,18	48,86
0,2	36,08	66,17	77,50
0,3	36,08	81,95	88,37
0,4	36,08	91,67	101,14
0,5	36,08	102,43	111,64

Tabela 7.1: Parâmetros referentes ao ajuste (b)

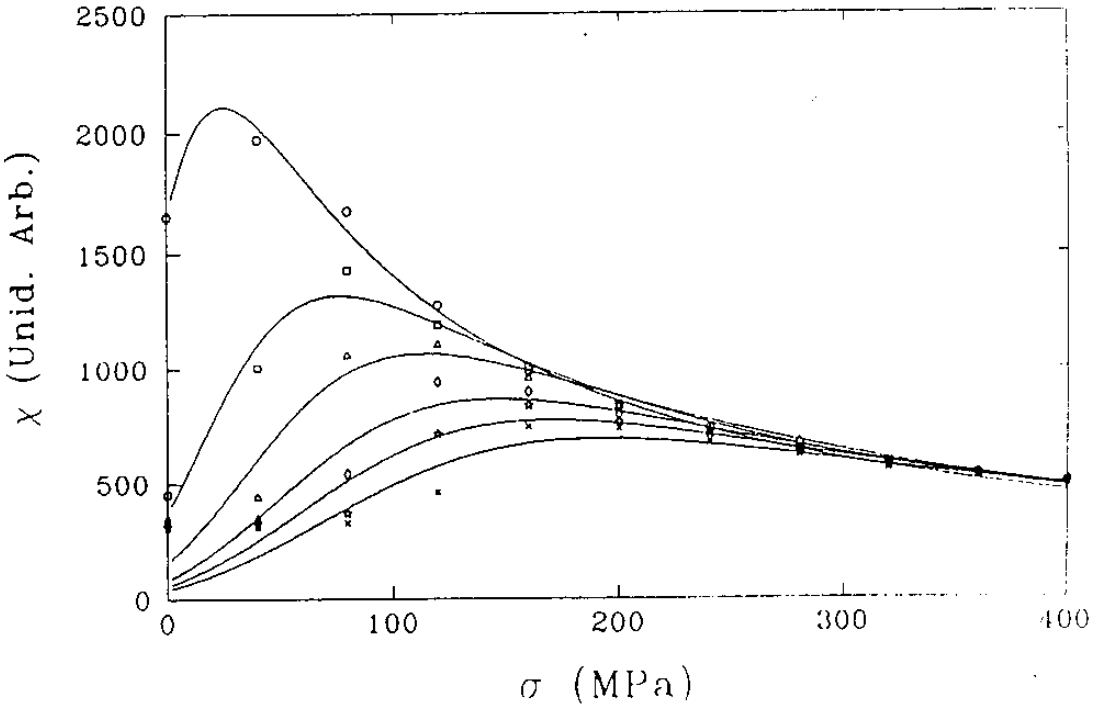

Figura 7.13: Curvas ajustadas para amostra $Fe_{4.6}$ (ajuste (b)).

7.1 Efeito de Tratamento Térmico para a amostra $Fe_{4.6}$

Com o objetivo de verificarmos a evolução da anisotropia na amostra ($Fe_{4.6}$), ela foi tratada termicamente a 523K sob ação de campo magnético longitudinal (180G), por intervalos de tempo crescentes (1,2,5,10,20 e 30m) e as dependências da susceptibilidade e do "aftereffect"com a tensão foram medidas em temperatura ambiente após cada tratamento. Os resultados de susceptibilidade obtidos estão mostrados na figura 7.14 onde se observa uma forte redução da susceptibilidade, já no primeiro minuto de tratamento, evidenciando o predomínio do mecanismo de deslocamento de paredes de 180 , devido à indução de anisotropia longitudinal, ou seja, ao crescimento de $K_{||}$. Com o tempo de tratamento, $K_{||}$ cresce e maiores tensões são necessárias para compensar seus efeitos. Quando isto ocorre, começa a haver magnetização por rotação e a susceptibilidade cresce, apresentando um máximo.

Na figura 7.15 mostramos os resultados teóricos e na tabela 7.2, os valores do ajuste. Fica claro que crescentes valores de $K_{||}$ respondem pelo deslocamento dos máximos das diversas curvas apresentadas. Neste caso, foi feito um ajuste manual dos dados , tendo em vista que no tratamento térmico devem ter ocorrido modificações em praticamente todos os parâmetros que caracterizam a amostra. Consideramos a situação ideal onde mantivemos fixo o valor da constante de magnetostrição para termos uma visão geral da evolução do parâmetro $K_{||}$. Neste ajuste foi necessário aumentarmos a tensão transversal de 30 para 90MPa para obtermos a intensidade correta do máximo da curva correspondente a um minuto de tratamento e para 120MPa para a segunda curva. Para tempos maiores de tratamento, somente o valor de $K_{||}$ precisou ser modificado.

CURVA	$\sigma_{\parallel} \times 10^7 dyna/cm^2$	$\sigma_{\perp} \times 10^7 dyna/cm^2$	$K_{\parallel} erg/cm^3$
1	30	30	15
2	30	90	165
3	30	120	315
4	30	120	465
5	30	120	615
6	30	120	765

Tabela 7.2:

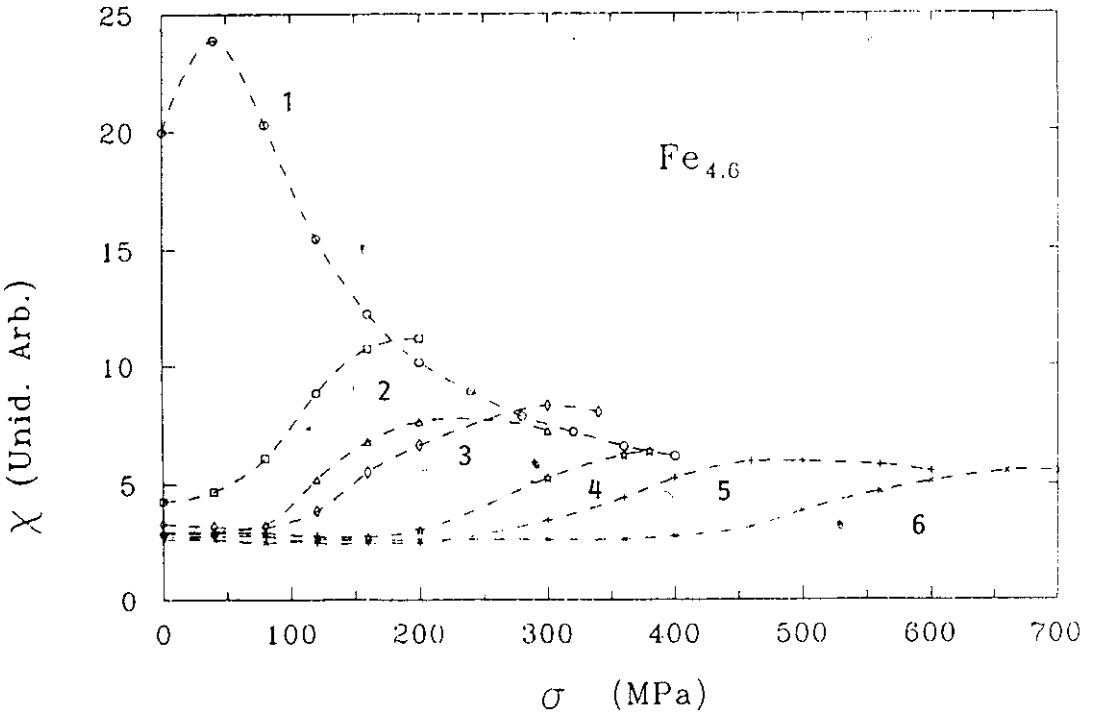

Figura 7.14: Resultados experimentais para amostra $Fe_{4.6}$ tratada a 523K, com campo longitudinal de 180 Oe, por 1)0, 2)1, 3)5, 4)10, 5)20 e 6)30 min.

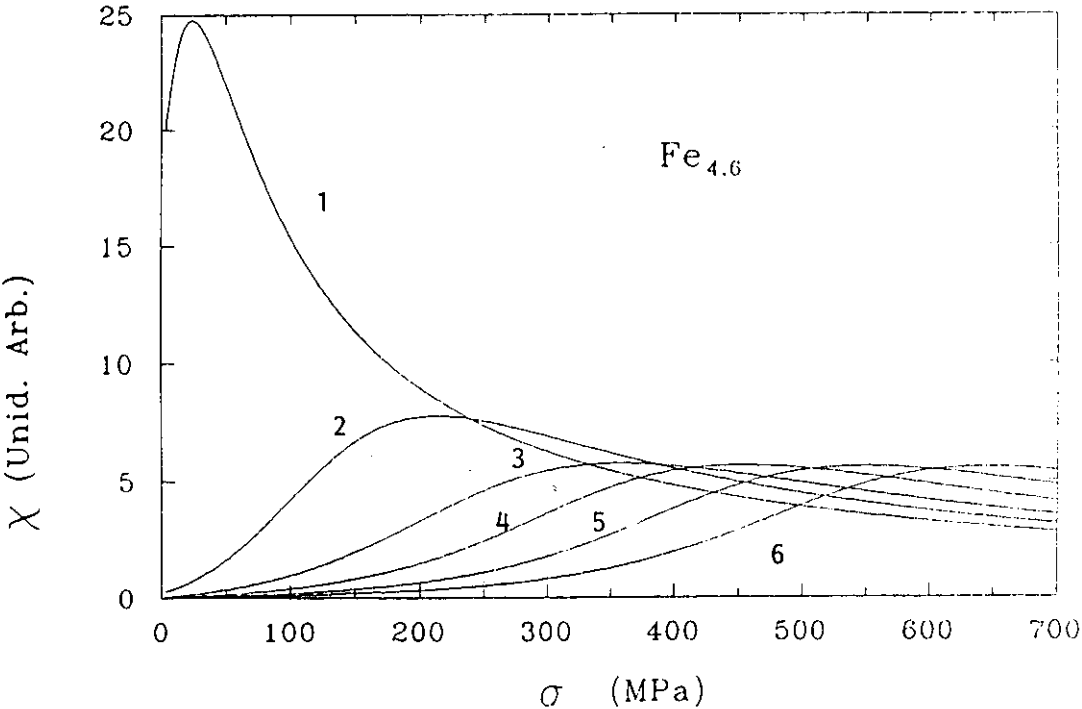

Figura 7.15: Curvas calculadas para amostra $Fe_{4.6}$, a partir da equação 5.7.

A figura 7.16 mostra a evolução dos processos de magnetização por medidas de "aftereffect" da permeabilidade.

Aqui observa-se uma redução do "aftereffect" justamente para as tensões onde predomina o mecanismo de rotação, confirmando nossa conclusão anterior. O "aftereffect", como vimos, depende do número N de defeitos reorientáveis dentro das paredes de domínios quando estas se movem, ou seja, ele é associado ao mecanismo de deslocamento de paredes. Assim, estes resultados mostram que na zona onde a susceptibilidade apresenta um máximo, o principal mecanismo é o de rotação da magnetização dentro dos domínios.

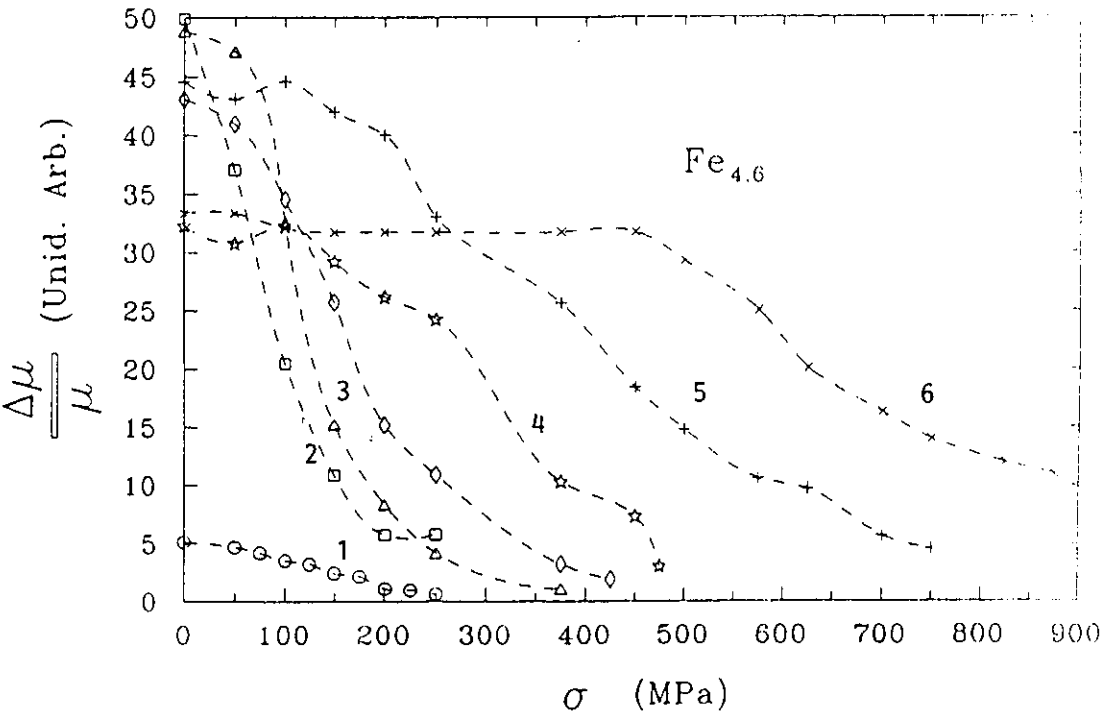

Figura 7.16: "Aftereffect" da permeabilidade magnética, em função da tensão mecânica, para a amostra $Fe_{4.6}$, após tratamentos térmicos de 1)0, 2)1, 3)5, 4)10, 5)20 e 6)30 min.

Capítulo 8

Influência das Condições de Produção na Evolução da Anisotropia com Tratamento Térmico

Vimos então, que através das medidas de susceptibilidade, a anisotropia longitudinal efetiva K_μ é sensivelmente aumentada quando as ligas amorfas são submetidas aos tratamentos térmicos, principalmente sob ação de campo magnético. Após 30 minutos de tratamento térmico a 523K sob ação de um campo de 180 Gauss na direção do eixo da fita de $Fe_{4.6}$, o efeito da tensão externa não é mais observável dentro do limite da experiência (ruptura da amostra). Já foi visto também que o "aftereffect" da permeabilidade inicial é muito sensível às relaxações estruturais e às modificações da estrutura de domínios, portanto as medidas de "aftereffect" contribuem para a compreensão dos mecanismos de magnetização nas ligas amorfas. Para poder estudar melhor a influência do campo externo nas modificações da estrutura de domínios e na relaxação estrutural foram realizadas medidas de "aftereffect" em três amostras produzidas com diferentes taxas de resfriamento. Já

é sabido que para altas taxas de resfriamento correspondem estruturas mais desordenadas. Isto se reflete na intensidade do "aftereffect" da permeabilidade inicial [Allia *et al* 1981], bem como na resistividade elétrica [Allia *et al* 1982b] das ligas amorfas, no estado "as cast". As diferentes variações destas propriedades, em diferentes amostras de mesma composição com tratamentos térmicos são atribuídas à relaxação estrutural e tem sido correlacionadas com a taxa de resfriamento [Allia e Vinai 1982, 1986 ; Kronmüller 1983; Allia *et al* 1981].

A relaxação destas propriedades ocorre com menores energias de ativação nas ligas resfriadas mais rapidamente. Como vimos no capítulo 3, na relaxação estrutural estarão presentes diferentes processos de ordenamento de curto alcance que, por sua vez, direcionam as modificações da estrutura de domínios.

Neste capítulo estudaremos a influência dos tratamentos térmicos com e sem campo aplicado no "aftereffect" da permeabilidade magnética inicial e na permeabilidade inicial nas ligas amorfas de $Co_{70.4}Fe_{4.6}Si_{15}B_{10}$, uma das amostras que foram estudadas na experiência anterior. São estudadas três amostras de velocidades de resfriamento V_R diferentes, que chamaremos de A,B e C, sendo $V_A < V_B < V_C$, e suas espessuras e, $e_A > e_B > e_C$ [Allia *et al* 1981]. As diferenças nas taxas de resfriamento também foram verificadas por medidas de "aftereffect" das amostras como fundidas, em temperatura ambiente. Os resultados obtidos foram :

Conjunto	Espessura (μm)	$(\Delta\mu/\mu)\,H_e$ (unid. arb.)
A	22	4,3 $\pm$ 0.9
B	20	10 $\pm$ 2
C	19	16 $\pm$ 3

O comprimento e a largura das amostras são respectivamente 8cm e 1,2mm.

O "aftereffect" da permeabilidade inicial e a permeabilidade inicial, com e sem campo aplicado, foram medidas à temperatura ambiente, como uma

função do tempo de tratamento, nestas três ligas, utilizando o mesmo sistema descrito no capítulo 6. Neste caso, a amplitude do campo senoidal, de 90KHz, devido ao deslocamento da posição do máximo com o tempo de tratamento, variou de 1.0 a 2.0 A/m.

A permeabilidade (μ) foi obtida através de medidas da indução magnética (B) na região linear da curva B vs.H.

As amostras foram submetidas a recozimentos em atmosfera de Ar na temperatura de T_a=473K com e sem campo DC longitudinal (Hdc=180G), e na temperatura de T_a=573K sem campo. Para cada medida efetuada, as amostras foram retiradas do forno e deixadas ao ar para serem resfriadas até a temperatura ambiente. Foram consideradas várias amostras para cada conjunto e os resultados aqui mostrados traduzem as médias de diversas medidas.

8.1 Resultados

Os valores relativos do "aftereffect" da permeabilidade inicial :

$$[(\Delta\mu/\mu)H_e]_t/[(\Delta\mu/\mu)H_e]_{t_0}$$

das amostras A,B e C tratadas a 473K, sem campo, são mostrados na figura 8.1. O valor de referência $[(\Delta\mu/\mu)H_e]_{t_0}$ é aquele obtido sem tratamento, ou seja em $t = t_0 = 0$.

No começo do tratamento, observa-se um crescimento de $(\Delta\mu/\mu)H_e$. com o tempo para as três amostras, enquanto que para tempos acima de 1000s cada amostra apresenta um comportamento que lhe é próprio. Para o conjunto de amostras A, $(\Delta\mu/\mu)H_e$ continua a crescer; para o conjunto B permanece quase constante e para o conjunto C o "aftereffect" decresce rapidamente com o tempo. As presentes medidas indicam que diferentes processos (TSRO e CSRO) [Egami 1983] produzem sobre $(\Delta\mu/\mu)H_e$ efeitos que competem entre si e que esta competição depende da taxa de resfriamento.

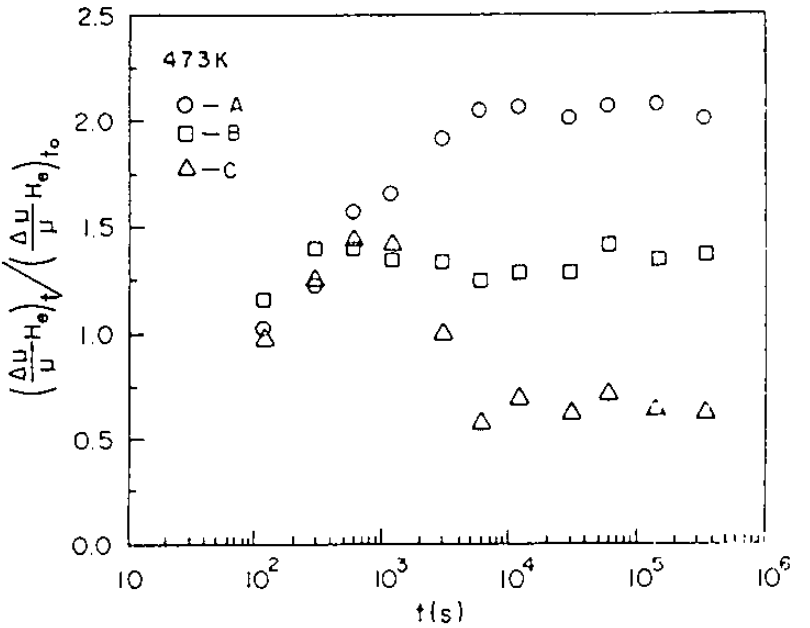

Figura 8.1: "Aftereffect" relativo, em função do tempo de tratamento, a 473K.

Na figura 8.2 mostramos o comportamento de $[(\Delta\mu/\mu)H_e]_t/[(\Delta\mu/\mu)H_e]_{t0}$ quando as amostras são tratadas sob ação do campo magnético longitudinal. Novamente, diferentes efeitos competitivos podem ser observados. Neste caso, o comportamento com o tempo de recozimento é bastante parecido para as tres amostras, apesar de grandes diferenças serem observadas nas intensidades. É interessante notar que as intensidades aqui mostradas são significativamente maiores do que aquelas da figura 8.1.

Quando as amostras são tratadas em temperatura mais elevada, (573K), (figura 8.3) para os conjuntos de menores taxas de resfriamento (A e B) só se observa um leve decréscimo do "aftereffect" com o tempo, a partir dos primeiros minutos de tratamento, enquanto que para o conjunto C ele permanece praticamente inalterado. Isto significa que nas duas primeiras amostras ainda estão ocorrendo os fenômenos de relaxação estrutural com o tempo de tratamento térmico, enquanto que na amostra C, no primeiro minuto, praticamente já foi atingido um estado metaestável mais estável. Estes resultados mostram novamente que os comportamentos dependem da taxa de resfriamento das amostras. Pode-se observar que os resultados para o tratamento a 573K apresentam um grau maior de dispersão do que os obtidos

a 473K, devido à flutuação no número de paredes de domínios presentes.

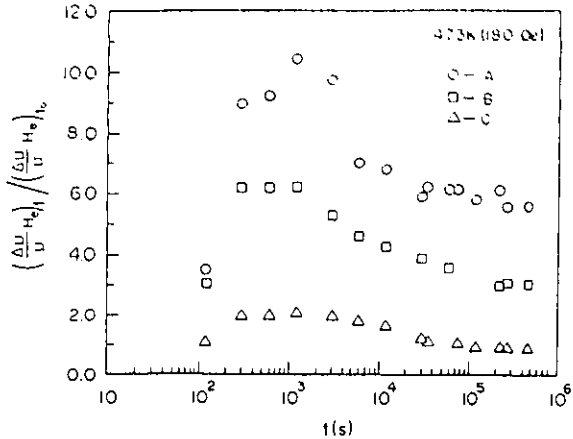

Figura 8.2: "Aftereffect" relativo, em função do tempo de tratamento, a 473K com campo longitudinal de 180 Oe.

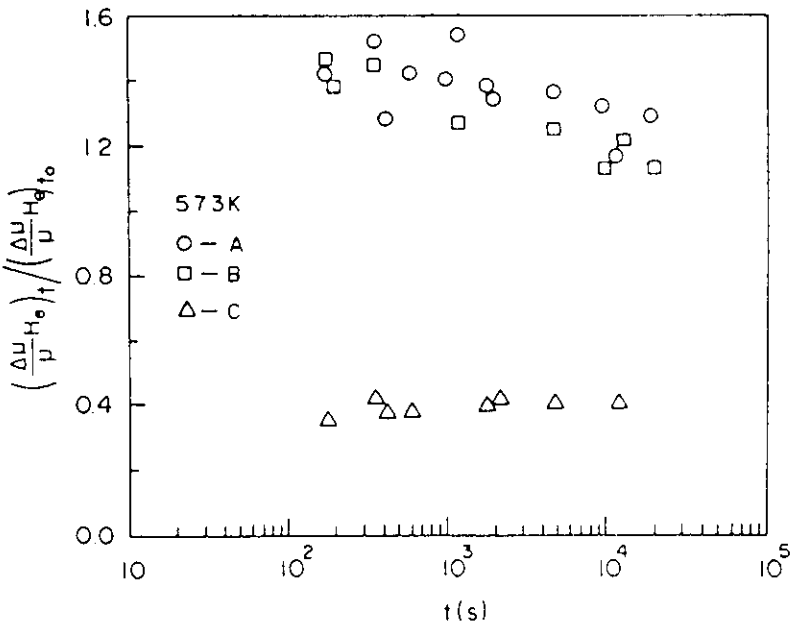

Figura 8.3: "Aftereffect" relativo, em função do tempo de tratamento, a 573K.

Em particular, o processo CSRO pode induzir mudanças significativas na distribuição dos átomos dentro da primeira camada de vizinhos de um dado átomo. A presença de uma anisotropia induzida, atribuida ao ordenamento direcional dos átomos, tem sido observada em ligas de Co Fe Si B quando submetidas a tratamentos térmicos [Severino *et al* 1991]. Em parte, a indução de anisotropia, pode ser acompanhada através de medidas da permeabilidade. No caso de tratamentos em campos transversais, foi mostrado existir uma relação direta entre o inverso da permeabilidade e a anisotropia induzida. Assumindo que, de modo geral, uma redução da permeabilidade traduz em um crescimento na anisotropia induzida, fizemos um acompanhamento da evolução da permeabilidade com o tempo de tratamento térmico. As figuras 8.4, 8.5 e 8.6 mostram a permeabilidade inicial relativa como função do tempo de recozimento nas mesmas condições das figura 8.1, 8.2 e 8.3 respectivamente. Estes resultados confirmam o desenvolvimento de uma anisotropia longitudinal ($K_{||}$), justamente onde o crescimento rápido de $(\Delta\mu/\mu)H_e$ é observado. Os valores de μ decrescem com o tempo de tratamento e de forma bem mais acentuada no caso do tratamento com campo. Uma redução de 70 a 80% é observada em tempos menores do que 1000s. Quando a temperatura de tratamento é 573K os processos de ordenamento ocorrem mais cedo e, no primeiro minuto, μ já atinge um valor de equilíbrio. As mudanças verificadas nos valores de μ são maiores quanto maior a taxa de resfriamento da amostra.

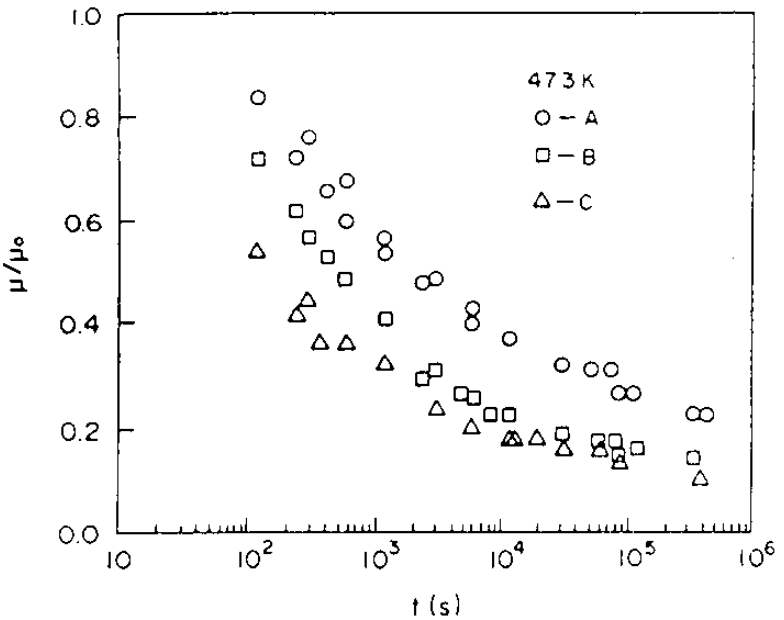

Figura 8.4: Permeabilidade relativa, em função do tempo de tratamento, a 473K.

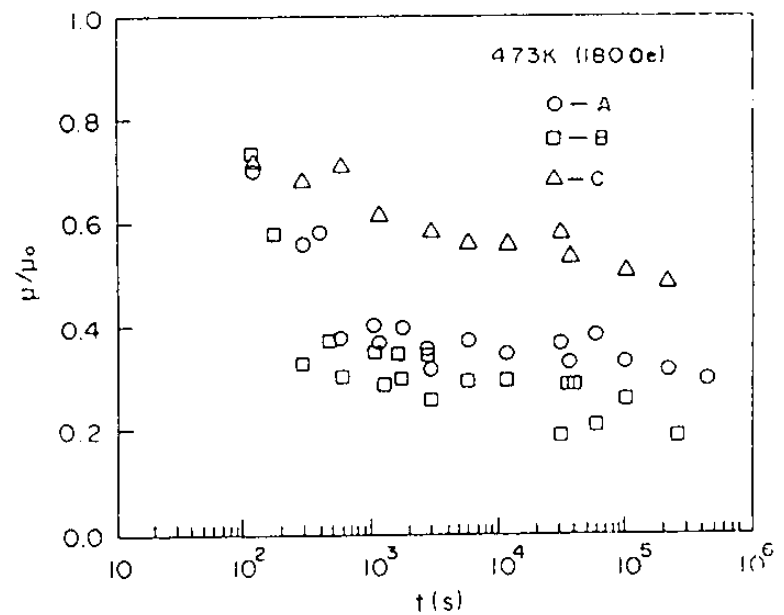

Figura 8.5: Permeabilidade relativa, em função do tempo de tratamento, a 473K com campo longitudinal de 180 Oe.

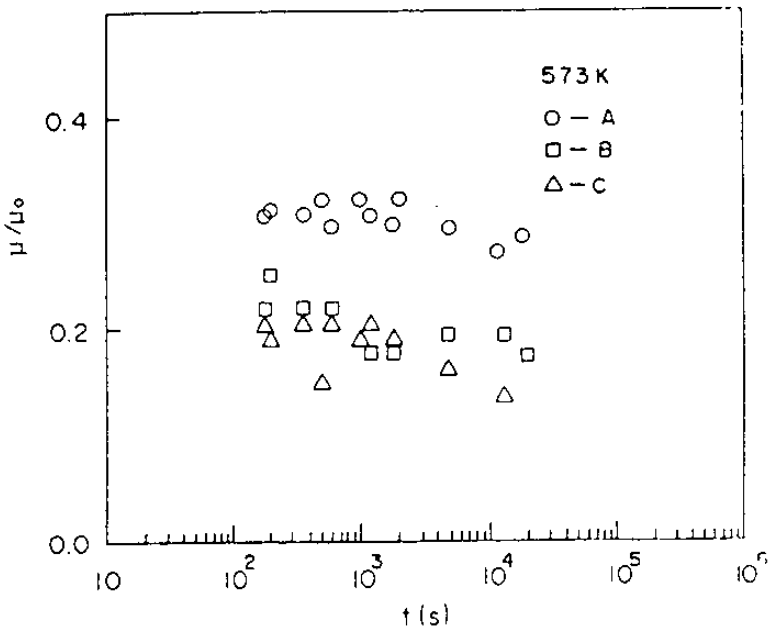

Figura 8.6: Permeabilidade relativa, em função do tempo de tratamento, a 573K.

8.2 Discussão

Os resultados que foram apresentados no capítulo 7 para a dependência da susceptibilidade em função da tensão longitudinal aplicada a amostra de Fe mostraram que :

i. a redução da susceptibilidade nos primeiros segundos de tratamento térmico sob ação de campo magnético está associada à mudança do mecanismo responsável pela magnetização. O mecanismo predominante passando a ser o de deslocamento de parede de 180° .

ii. a anisotropia efetiva cresce com o tempo de tratamento, o que é demonstrado pela observação de que : cada vez tensões externas maiores são necessárias para girar os domínios e obtermos um crescimento da susceptibilidade.

O estudo da evolução da anisotropia através de medidas de susceptibilidade sob tensão, na amostra tratada, não foi possível, uma vez que as tensões necessárias para modificar os padrões de domínios estabelecidos seriam maiores do que as tensões de ruptura das nossas amostras. Entretanto, podemos considerar que os mecanismos de evolução da anisotropia são os mesmos que haviamos identificado naquele trabalho e nas medidas de "aftereffect" [Allia e Vinai 1982,1986]. Esta evolução reflete- se principalmente na alteração do número (N) de defeitos estruturais que efetivamente contribuem para o processo. Inicialmente, os processos de ordenamento químico de curto alcance, induzidos pelo efeito forma e pela anisotropia residual, no caso dos tratamentos sem campo e, pelo efeito forma, a anisotropia residual e o campo magnético no caso com campo, são os responsáveis pela rápida modificação no padrão de domínios, aumentando o número de domínios magnetizados longitudinalmente. Como decorrência, a magnetização passa a ocorrer principalmente pelo mecanismo de deslocamento de paredes de 180 , aumentando o "aftereffect". Desta forma, $(\Delta\mu/\mu)H_e$ cresce rapidamente nos primeiros ins-

tantes de tratamento. As intensidades atingindas no caso de tratamento com campo são pelo menos cinco vezes maiores do que sem campo.

Nos estágios mais avançados devem ocorrer :

i. uma fusão das muitas paredes de domínios relativamente orientadas segundo a direção longitudinal, em poucas e bem orientadas paredes, como mostrado em [Dong *et al* 1982].

ii. processos de ordenamento topológico de curto alcance com eliminação de volumes livres.

Estes efeitos contribuem na redução do número de defeitos que participam do fenômeno de "aftereffect", consequentemente reduzindo sua intensidade, como observado após 1000s.

A grande diferença entre os comportamentos das curvas de "aftereffect" x tempo para as diferentes amostras está relacionado com os diferentes conteúdos de volume livre, ou os diferentes graus de desordem estrutural inicial. É importante notar que no caso da amostra com mais alta taxa de resfriamento (C), o "aftereffect" relativo obtido a 473 com e sem campo tem comportamentos similares, enquanto que as outras amostras apresentam este mesmo comportamento, somente no caso com campo. Isto mostra que a cinética de evolução dos padrões de domínios é fortemente dependente do grau de desordem estrutural, ou seja, os processos de ordenamento acontecem com energias de ativação menores nas amostras com maior taxa de resfriamento. As amostras A e B necessitam da energia adicional fornecida pelo campo para que seus padrões de domínios longitudinais atinjam os mesmos graus de refinamento daqueles da amostra C sem campo.

Capítulo 9

Decaimento da Indução Magnética em Fios Amorfos

Como veremos, os fois amorfos apresentam uma anisotropia magnética bem definida, devido ao processo utilizado em sua obtenção. Como consequência, apresentam padrões de domínios melhores definidos do que no caso das fitas. Desta forma, através da aplicação da tensões externas longitudinais, podemos impor modificações no estado de anisotropia magnética original e consequentemente nos mecanismos de magnetização efetivos.

Para estudar a influência da tensão nos processos de magnetização, também efetuamos medidas de decaimento da indução magnética nas amostras de fios ferromagnéticos amorfos de $\lambda_s = 2,1 \times 10^{-7}$ e $\lambda_s = 35 \times 10^{-6}$ e foram comparadas com os resultados obtidos para fitas de composições semelhantes.

O processo de produção de fios amorfos é muito semelhante ao processo de fabricação de fitas. No caso das fitas, a liga fundida é ejetada do cadinho sobre um cilindro de cobre que gira em alta velocidade, o que produz a alta taxa de resfriamento necessária para impedir a cristalização e, por outro lado, implica na forma plana do material solidificado.

Para a obtenção de um amorfo com formato cilíndrico é necessário que a extração de calor ocorra de forma radial. Para isto, o material fundido é

ejetado sobre uma lâmina de água em alta rotação. Em uma roda de cobre é feita internamente uma canaleta onde coloca-se água. Com a rotação obtem-se uma lâmina líquida uniforme. Esta técnica é chamada "melt-spinning in water" [Ohnaka *et al* 1981, Masumoto *et al* 1981]. A figura 9.11 ilustra este processo.

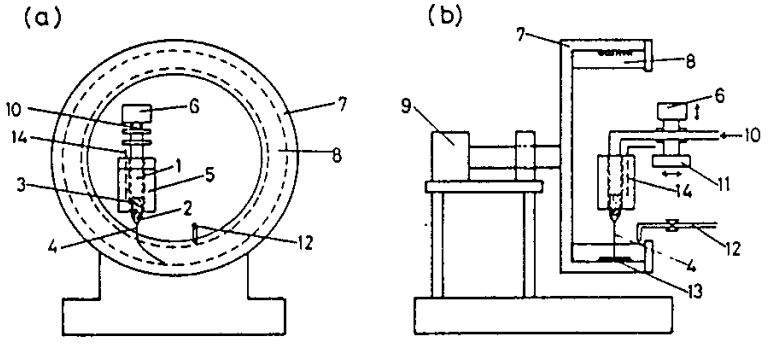

Figura 9.1: Sistema para obtenção de fios amorfos ("Melt-spinning in water"). 1)Cadinho, 2)Fenda, 3)Liga fundente, 4)Fio, 5)Bonina de Indução 6)Válvula de Pressão, 7)Cilindro de cobre, 8)Água, 9)Motor, 10)Entrada de argônio, 11)Válvula, 12)Sistema de alimentação de água

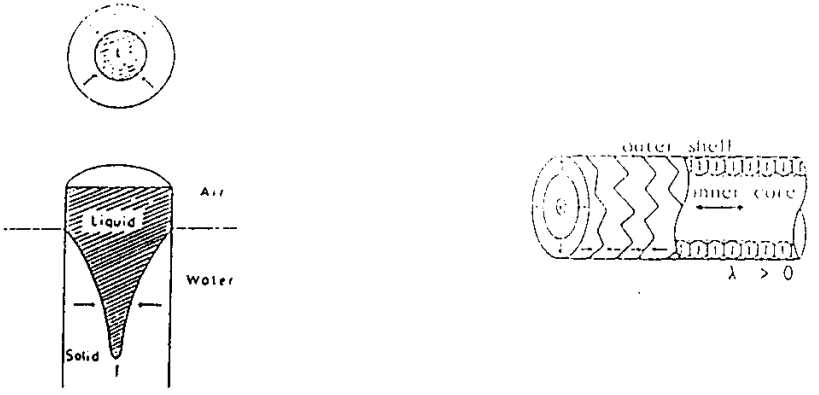

Figura 9.2: (a)Vista esquemática da secção transversal e lateral do fio durante o resfriamento. (b)Modelo de domínios para fios amorfos com $\lambda > 0$

Um padrão de tensões internas bem definido aparece nos fios preparados por esta técnica , devido à extração de calor radial. O núcleo central solidifica por último e fica sujeito a fortes tensões axiais, enquanto que na camada externa as tensões são radiais, como mostra a fig. 2. Estas tensões internas determinam uma anisotropia magnética de origem magnetoelástica do tipo:

$$E_\sigma = \frac{3}{2}\lambda\sigma\cos^2\theta$$

com orientação axial no núcleo central e radial na camada externa [Mitra 1990].

No caso de materiais com $\lambda > 0$, esta anisotropia favorece a magnetização axial no núcleo e radial na periferia. Quanto maior for a magnetostrição, mais marcante será a definição das duas regiões.

Tem sido mostrado que esta anisotropia é suficiente para manter o núcleo em um estado de magnetização remanente [Mohri 1985], o que explica a biestabilidade magnética observada (tais fios tem sido utilizados como elementos biestáveis]. A figura 9.2 mostra o padrão de domínios nos fios, de acordo com [Mohri *et al* 1990].

Diversas propriedades magnéticas dos fios amorfos tem sido objeto de estudos recentes, entretanto, que se tenha conhecimento, esta é a primeira vez que medidas de decaimento são efetuadas.

O decaimento observado em amorfos é indesejável, do ponto de vista tecnológico, porém, é uma característica intrínseca de todos os amorfos ferromagnéticos. Sendo o decaimento da permeabilidade altamente sensível a modificações estruturais, o acompanhamento de sua evolução é uma técnica adequada para investigar o comportamento dos domínios magnéticos sob diferentes condições experimentais.

Aqui, mostramos a influência da tensão mecânica sobre o decaimento da permeabilidade magnética inicial em uma amostra de alta magnetostrição ($\lambda_s = 35 \times 10^{-6}$) de composição $Fe_{77.5}Si_{7.5}B_{15}$ e outra, de baixa magnetostrição ($\lambda_s = 2,1 \times 10^{-7}$) de composição : $(Fe_{6.3}Co_{92.7}Nb_1)_{77.5}Si_{7.5}B_{15}$, ambos

com um diâmetro típico de 125μm, e os resultados são comparados àqueles observados em fitas de composição similar.

As fitas utilizadas foram : $Fe_{75}Si_{15}B_{10}$ com dimensões (10cm, 0.7mm, 32μm); $Co_{69}Fe_6Si_{15}B_{10}$ (10cm, 0.8mm, 25μm), produzidas por "melt-spinnig" ao ar.

O decaimento (Δ B) foi medido pela técnica impulsiva ,já descrita no capítulo 6, entre os tempos fixos $t_1 = 0.2$s e $t_2 = 8$s em temperatura ambiente. Após um rápido pulso magnético ($\approx 10^{-5}$ s), o decaimento da indução magnética : $\Delta B = B(t_2)$-$B(t_1)$ foi medido usando-se um amplificador lock-in PAR-124A.

9.1 Resultados

9.1.1 Fitas Amorfas

O comportamento das curvas ΔB vs. B para diversos níveis de tensão aplicada (σ) é mostrado na figura 9.3 para a fita amorfa "as cast" de base Co. Um comportamento semelhante é obtido para as fitas de base Fe como mostrado na figura 9.4.

Um largo máximo aparece na medida sem tensão. Com aplicação de tensão o máximo desloca-se para valores de B menores. Observa-se tambem uma variação na amplitude do máximo : ela inicialmente aumenta, passando a decrescer em altas tensões.

Nas fitas amorfas, quando o processo de magnetização por deslocamento de parede aumenta em relação ao processo de rotação, a indução é reduzida (para um mesmo He), o decaimento ΔB aumenta e uma variação na amplitude do máximo na curva ΔB vs. B com a tensão aplicada é sempre observada.

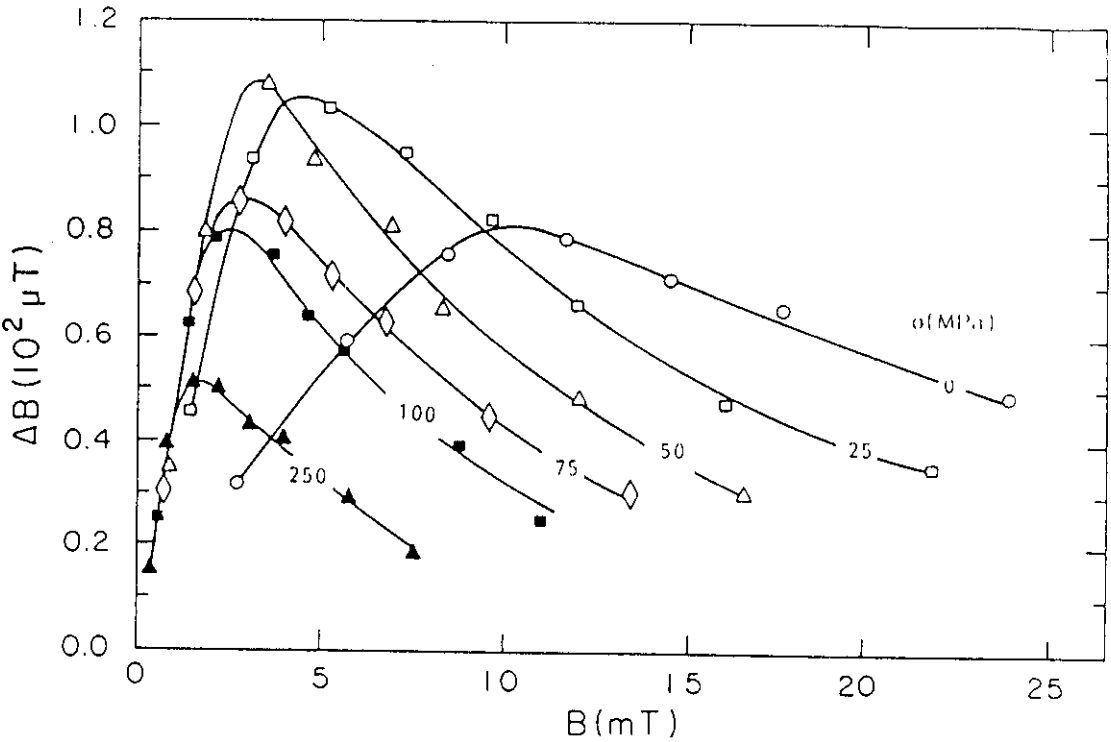

Figura 9.3: Decaimento da indução magnética (Δ B) em função de B, para fita amorfa de base cobalto. As curvas são caracterizadas por diferentes tensões

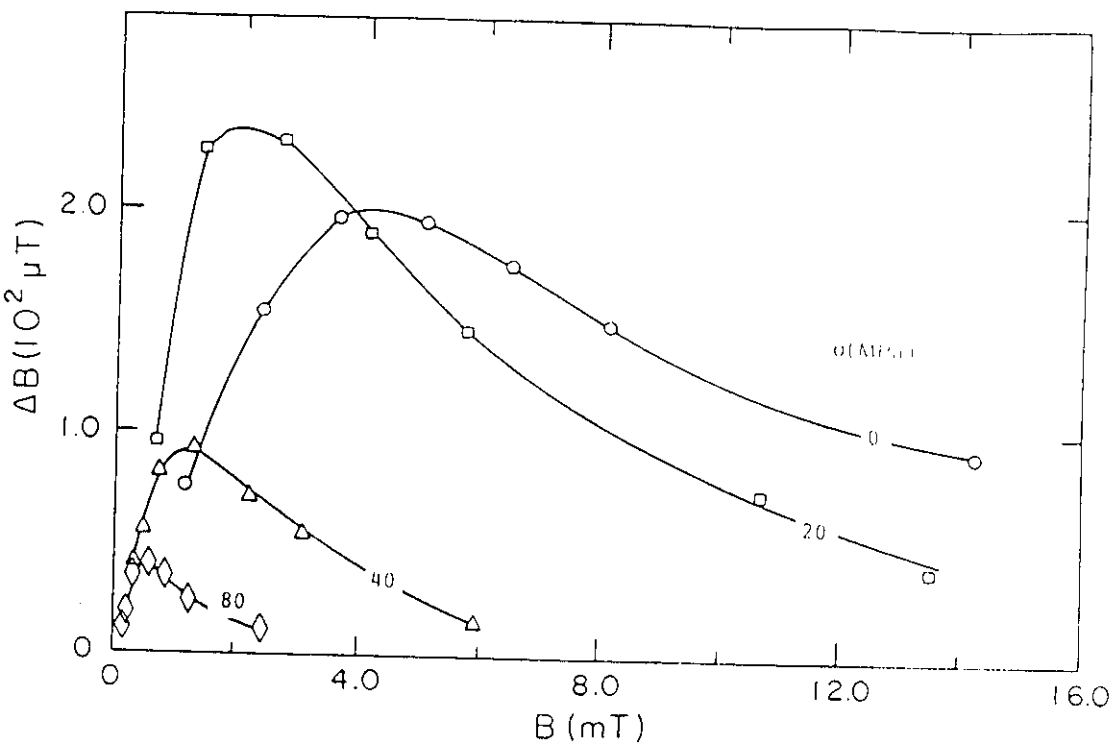

Figura 9.4: Decaimento da indução magnética (Δ B) em função de B, para fita amorfa de base ferro. As curvas são caracterizadas por diferentes tensões

Em uma amostra com $\lambda > 0$ sob tensão, a indução de anisotropia longitudinal local, promove a nucleação de novas paredes de 180° . Neste caso, o processo de magnetização predominante inicial é o de deslocamento de parede. Enquanto este processo continua a acontecer, a intensidade da desacomodação ΔB cresce. Este processo de nucleação de paredes, entretanto, atinge um ponto crítico onde, um novo aumento da anisotropia faz com que as multiplas paredes locais fundam-se em paredes de maior extensão, porem em menor número [Dong *et al* 1982]. Nestas condições, o número de defeitos magnéticos que participam do processo de decaimento é reduzido e ΔB cai. Outro efeito, que atua no mesmo sentido (redução de ΔB em altas tensões e deslocamento do pico para regiões de baixos valores de B), é a redução da espessura das paredes com o aumento da anisotropia efetiva, de acordo com

$$\delta \propto \frac{1}{K_{eff}^{\frac{1}{2}}}$$

9.1.2 Fios Amorfos

A figura 9.5 mostra o deslocamento do máximo para B menores e a variação na forma das curvas ΔB vs. B para os fios amorfos com base Fe, para diversas tensões aplicadas.

Apesar de muito semelhante ao caso das fitas, ocorre uma pequena redução em ΔB para uma tensão da ordem de 40MPa. Esta redução inicial do máximo é mais pronunciada no caso dos fios de Co como mostrado na figura 9.6. Aqui , a redução ocorre até valores de σ de aproximadamente 130 MPa para então começar a crescer como no caso das fitas. Para fios amorfos "as cast", com λ_s positivo, no estado sem tensão, o padrão de domínios é principalmente composto de um núcleo central em um estado de magnetização remanente e domínios radiais na camada externa, com domínios de fechamento axiais na superfície do fio e na interface entre o núcleo e a camada externa. Somente a camada externa pode contribuir para o decaimento ΔB, sendo o processo de magnetização principalmente devido aos deslocamentos

de paredes dos domínios de fechamento e à rotação dos momentos magnéticos dos domínios radiais.

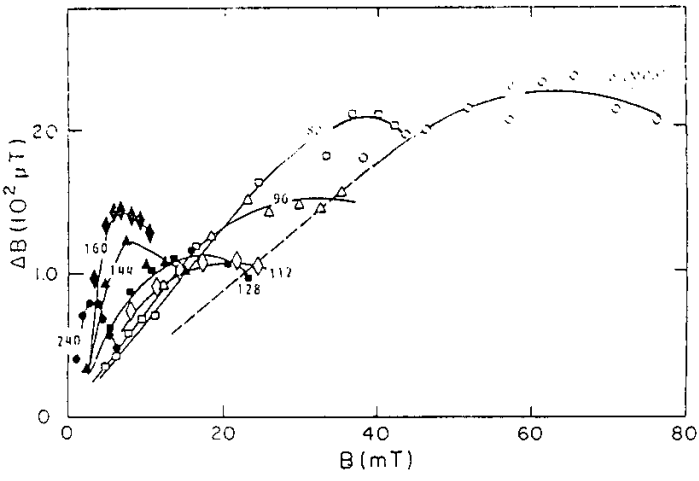

Figura 9.5: Decaimento da indução magnética (Δ B) em função de B, para fios amorfos de base cobalto. As curvas são caracterizadas por diferentes tensões

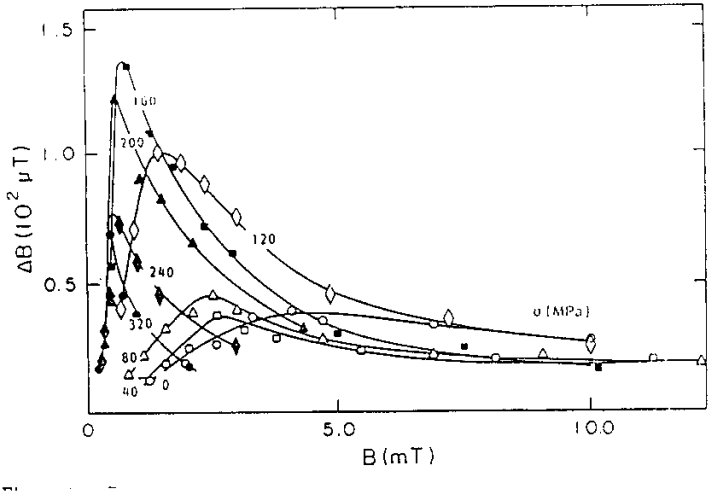

Figura 9.6: Decaimento da indução magnética (Δ B) em função de B, para fios amorfos de base ferro. As curvas são caracterizadas por diferentes tensões

Com a tensão, a zona de transição entre o núcleo central, com anisotropia axial e a camada externa, com anisotropia radial, desloca-se, reduzindo a espessura da camada externa.

Os domínios de fechamento internos são reduzidos em volume e deslocam-se no sentido de mais alta anisotropia radial. O número de paredes diminui e elas têm sua mobilidade reduzida. Esta redução do número de paredes efetivas, explica a redução observada no decaimento ΔB. A partir deste ponto, os mecanismos de modificação do padrão de domínio são os mesmos que acontecem nas fitas , ou seja : os domínios radiais quebram-se, nucleando domínios longitudinais até o ponto em que as paredes colapsam e passam a ter sua espessura reduzida pela anisotropia.

Para o fio de base Co (com menor λ_s), tensões maiores são necessárias para produzir as mesmas alterações no padrão de domínios.

Em conclusão, as medidas de decaimento nos permitem estudar a dependência da dinâmica das paredes de domínios com a tensão. O comportamento das curvas ΔB vs. B para ligas com base Fe ou Co é qualitativamente o mesmo, sendo a constante de magnetostrição o principal fator que determina a taxa de modificação dos padrões de domínios. Depois da quebra dos domínios radiais, os fios tem um comportamento semelhante ao das fitas a não ser pela gradual redução do volume de fio que contribui para a magnetização.

Capítulo 10

Conclusão

A partir da perspectiva de verificar a variação da constante de magnetostrição (λ_s) com a aplicação de tensão mecânica em ligas ferromagnéticas amorfas, pudemos desenvolver um estudo aprofundado sobre como as anisotropias influenciam os processos de magnetização. Medindo a susceptibilidade inicial (χ) em função da tensão aplicada, para uma série de amostras com λ_s diferentes pudemos verificar que o comportamento observado nas curvas $\chi(\sigma)$ pode ser explicado levando em consideração somente as mudanças nas anisotropias envolvidas, que consequentemente alteram a estrutura de domínios. Assim, resultados da literatura que atribuem ao máximo obtido nas curvas $\chi(\sigma)$ uma inversão de sinal de λ_s foram criticados, levando em consideração a não uniaxialidade da anisotropia magnética presente nesses materiais.

Com isto em mente, foi desenvolvido um modelo fenomenológico para a susceptibilidade por rotação da magnetização, levando em consideração os diversos termos de anisotropia que contribuem para a formação de uma dada estrutura de domínios. Em particular, o modelo é flexível o suficiente para explicar os efeitos de tensões mecânicas, tratamentos térmicos e campos magnéticos aplicados à amostra sob diferentes condições. No entanto, verificam-se algumas limitações, que podem ser vencidas ao termos uma me-

lhor visão dos processos físicos envolvidos, levando a um aprimoramento no modelo.

Desta forma, vemos que com uma descrição adequada da susceptibilidade magnética, pode-se obter informações sobre os fatores que influenciam os processos de magnetização em ferromagnetos amorfos.

A técnica de medida que desenvolvemos, alterando a estrutura de domínios através da aplicação de campo magnético longitudinal DC tem a vantagem de manter as amostras em seu estado metaestável original, não alterando de forma irreversível o estado de tensões internas, o ordenamento direcional dos pares atômicos e a constante de magnetostrição. Isto permitiu, atribuirmos de forma mais clara as modificações nos padrões de domínios aos efeitos da anisotropia magnetoelástica imposta pelas tensões aplicadas e avaliar o papel das outras contribuições.

Complementando tais medidas com medidas de relaxação da permeabilidade magnética ("aftereffect"), podem ser obtidas mais informações sobre os processos de ordenamento local nesses materiais. O "aftereffect", que é mais sensível à estrutura e defeitos presentes na amostra, dá idéia da influência de fatores muito importantes, que normalmente são desprezados. Neste trabalho, pudemos verificar a influência da taxa de resfriamento (i.e. do grau de amorficidade) das amostras na cinética da relaxação estrutural. Portanto, ao se comparar resultados, deve-se primeiro verificar a estrutura metaestável inicial, que influencia diretamente os processos de ordenamento local de curto alcance.

Com o estudo do "aftereffect" em fios amorfos, foi verificado, pela primeira vez, a existência do fenômeno de relaxação magnética nesses materiais. O "aftereffect", que do ponto de vista de aplicações tecnológicas é uma característica que deve ser evitada, levou a ter uma idéia da estrutura de domínios e processos de magnetização nos fios. Nesses materiais, onde a observação direta de domínios é muito difícil, as medidas de relaxação podem fornecer boas informações a este respeito.

Ao concluir este trabalho, diversas questões permanecem em aberto, indi-

cando a complexidade e diversidade dos fenômenos tratados. O magnetismo de ligas metálicas amorfas é ainda pouco estudado e os processos intrínsecos e fundamentais ainda mal compreendidos. Aqui mostramos que levando em consideração, de forma simples, diversas contribuições para a anisotropia, é possível descrever de forma adequada as diversas influências que a estrutura de domínios pode sofrer com a aplicação de fatores externos. Isto é de importância fundamental não só da perspectiva de aplicações, mas também para ajudar a compreender melhor os processos envolvidos nas propriedades magnéticas de ligas metálicas amorfas metaestáveis.

Nosso trabalho abriu perspectivas para novas pesquisas a serem realizadas; por exemplo, a possibilidade do desenvolvimento de um método de medida da constante de magnetostrição ; acompanhar a evolução da anisotropia e dos processos de magnetização em amostras com λ_s positivo através da aplicação de campo DC transversal.

Bibliografia

[Allia 1989] P. Allia. *J. Magn. Magn. Mat.*, **82**,77, (1989).

[Allia *et al* 1991] P. Allia, C. Beatrice, G. Brida, and F. Vinai. (1991). Trabalho apresentado no EMMA-91.

[Allia *et al* 1981] P. Allia, F. E. Luborski, R. Sato Turtelli, G. P. Soardo, and F. Vinai. *IEEE Trans. Magn.*, **17**,2615, (1981).

[Allia *et al* 1980] P. Allia, P. Mazzetti, G. P. Soardo, and F. Vinai. *J. Magn. Magn. Mat.*, **19**,281, (1980).

[Allia *et al* 1982(b)] P. Allia, G. Riontino, R. Sato Turtelli, and F. Vinai. *Sol. Stat. Comm.*, **43**,821, (1982).

[Allia *et al* 1983] P. Allia, R. Sato Turtelli, and F. Vinai. *J. Magn. Magn. Mat.*, **39**,279, (1983).

[Allia e Vinai 1982] P. Allia and F. Vinai. *Phys. Rev.*, **B-26**,6141, (1982).

[Allia e Vinai 1986] P. Allia and F. Vinai. *Phys. Rev.*, **B(33)**,422, (1986).

[Allia e Vinai 1978] P. Allia and F. Vinai. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-14**,1050, (1978).

[Allia *et al* 1987] P. Allia, F. Vinai, and R. Sato Turtelli. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**,2542, (1987).

[Barandiarán *et al* 1987] J.M. Barandiarán and *et al.* *Phys. Rev.*, **B(35)**,5066, (1987).

[Becker 1978] J. J. Becker. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-14**,938, (1978).

[Berry e Pritchet 1975] B. S. Berry and W. C. Pritchet. *Phys. Rev. Lett.*, **34**,1022, (1975).

[Bhatia e Thorton 1970] A.B. Bhatia and D.E. Thornton. *Phys. Rev. B*, **B(2)**,3004, (1970).

[Bourrous e Kronmüller 1989] M. Bourrous and H. Kronmüller. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)113**,740, (1989).

[Chambron e Chamberod 1980] W. Chambrom and A. Chamberod. *Sol. Stat. Comm.*, **33**,157, (1980).

[Cowley 1950] J.M. Cowley. *J. Appl. Phys*, **21**,24, (1950).

[Cruz Filho *et al* 1991] S.P. Cruz Filho, M. Knobel, J.P. Sinnecker, and R. Sato Turtelli. *Rev. Bras. Fis.*, **21(2)**,136, (1991).

[Cullity 1972] B. D. Cullity. *Introduction to Magnetic Materials.* Addison-Wesley, (1972).

[Dong *et al* 1982] X.Z Dong, B. Grager, T. Jendrysik, and H. Kronmüller. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)71**,441, (1982).

[Dong e Kronmüller 1982] X.Z Dong and H. Kronmüller. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)70**,451, (1982).

[Draganowska *et al* 1989] H. Draganowska, J. Slama, and B. Butvin, P. Butvinova. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)115**,533, (1989).

[Egami 1978] T. Egami. *J. Mater. Sci.*, **13**,258, (1978).

[Egami 1983] T. Egami. *J. Magn. Magn. Mat.*, **31-34**,1571, (1983).

[Egami 1976] T. Egami and P.J. Flanders. AIP Conf. Proc. In J.J.Becker, G.H.Lander and J.J.Rhyne, editor, , page 220, (1976).

[Egami *et al* 1980] T. Egami, K. Maeda, and V. Vitek. *Phil. Mag.*, **41**,883, (1980).

[Egami e Srolovitz 1982] T. Egami and D. Srolovitz. *J. Phys. F.*, **53**,2319, (1982).

[Fahnle e Egami 1982] M. Fahnle and T. Egami. *J. Appl. Phys.*, **53**,2319, (1982).

[Fernández *et al* 1987] N.L. Fernández-Gubieda, J.M. Barandiarán, and O.V. Nielsen. *J. Appl. Phys.*, **62(6)**,2579, (1987).

[Fujimori 1980] H. Fujimori. Proc. 5th Int. Sym. on High Purity Materials in Science and Tecnology, Dresden - vol.III. In , page 198, (1980).

[Fujimori *et al* 1977] H. Fujimori, H. Morita, Y. Obi, and S. Ohta. *Amorphous Magnetism II.* R. A. Levy and R. Hasegawa, (1977).

[Fujimori *et al* 1981] H. Fujimori, H. Yoshimoto, T. Masumoto, and T. Mitera. *J. Appl. Phys.*, **52**,1893, (1981).

[Furthmuller *et al* 1987] J. Furthmuller, M. Fahnle, and G. Herzer. *J. Magn. Magn. Mat.*, **69**,79, (1987).

[Graham e Egami 1978] C.D. Graham and T. Egami. *Ann. Rev. Mater. Sci.*, **8**,423, (1978).

[Gyorgi *et al* 1976] E. M. Gyorgi, H. J. Leamy, R. C. Sherwood, and H. S. Chen. *AIP Conf. Proc.*, **29**,198, (1976).

[Herzer 1986] G. Herzer. Proc.of the International on Soft Magnetic Materials. In , page 335, (1986).

[Ho *et al* 1982] K.Y. Ho, P.J. Flanders, and C.D. Graham Jr. *J. Appl. Phys.*, **53**,2279, (1982).

[Jiagelinski 1982] T. Jagielinski. *J. Appl. Phys.*, **53**, (1982).

[Kisdi-Koszo *et al* 1980] E. Kisdi-Koszo, P. Vojtanik, and L. Potocky. *J. Magn. Magn. Mat.*, **19**,159, (1980).

[Klement *et al* 1960] W. Klement, R.H. Willens, and P. Duwez. *Nature(London)*, **187**,869, (1960).

[Kohmoto *et al* 1980] O. Kohmoto, H. Fujushima, and T. Ojima. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-16**,440, (1980).

[Kraus 1989] L. Kraus. *Acta Phys. Polon.*, **A(76)**,147, (1989).

[Kraus 1990] L Kraus. *Phys. Stat. Sol.*, **(b)161**,853, (1990).

[Kronmüller 1983] H. Kronmüller. *Phil. Mag. B*, **53**,127, (1983).

[Kronmüller 1979] H. Kronmüller, M. Fähnle, M. Domann, H. Grimm, R. Grimm, and B. Gröeger. *J. Magn. Magn. Mat.*, **13**,53, (1979).

[Livingston 1979] J.D. Livingston. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)56**,637, (1979).

[Livingston e Morris 1985] J.D. Livingston and W.G. Morris. *J. Appl. Phys.*, **57(1)**,3555, (1985).

[Livingston *et al* 1983] J.D. Livingston, W.G. Morris, and T. Jagielinski. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-19(5)**,1916, (1983).

[Luborski 1976] F.E. Luborski, R.O. McCary, and J.J. Becker. *Rapid Quenched Metals.* Massachusetts Istitute of Technology Press., Cambrige, Mass., (1976).

[Luborski e Walter 1977] F.E. Luborski and J.L Walter. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-13**,953, (1977).

[Masumoto e Egami 1981] T. Masumoto and T. Egami. *Mater. Sci. Eng.*, **48**,147, (1981).

[Masumoto *et al* 1981] T. Masumoto, I. Ohnaka, A. Inoue, and M. Hagiwara. *Scr. Metall*, **15**,293, (1981).

[Mizogushi *et al* 1978] T. Misogushi *et al.* Proc. $3^{t}rd$ Int. Conf. on Rapidly Quenched Metals. In Cantor,B., editor, , page 384, (1978).

[Mitra e Vázquez 1990] A. Mitra and M. Vázquez. *J. Phys. D, Appl. Phys.*, **23**,223, (1990).

[Mohri *et al* 1985] K. Mohri, F.B. Humphrey, and F. Yamasaki, J. Kinochita. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-21**,2017, (1985).

[Mohri e Takamido 1990] K. Mohri and H. Takamido. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-26(5)**,1783, (1990).

[Morita *et al* 1979(b)] H. Morita, H. Fujimori, and Y. Obi. *Jap. J. Appl. Phys.*, **18**,683, (1979).

[Morita *et al* 1979(a)] H. Morita, H. Fujimori, and Y. Obi. *Jap. J. Appl. Phys.*, **20**,126, (1979).

[Morita *et al* 1980] H. Morita, H. Fujimori, and Y. Obi. *J. Magn. Magn. Mat.*, **15-18**,1359, (1980).

[Morita e Obi 1980] H. Morita and Y. Obi. *Appl. Phys.*, **22**,313, (1980).

[Narita *et al* 1980] K. Narita, J. Yamasaky, and H. Fukunaga. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-16(2)**,435, (1980).

[Néel 1954] M.L. Néel. *J. Phys. Radium*, **15**,225, (1954).

[Nielsen *et al* 1983] O.V. Nielsen, L.K. Hansen, A. Hernando, and V. Madurga. *J. Magn. Magn. Mat.*, **36**,73, (1983).

[Nielsen e Nielsen 1980(a)] O.V. Nielsen and H.J.V. Nielsen. *Sol. Stat. Comm.*, **35**,281, (1980).

[nielsen e Nielsen 1980(b)] O.V. Nielsen and H.J.V. Nielsen. *J. Magn. Magn. Mat.*, **22**,21, (1980).

[Obi 1979] Y. Obi. *Appl. Phys.*, **18**,119, (1979).

[O'Handley 1976] R.C. O'Handley. AIP Conf. Proc. In J.J.Becker, G.H.Lander and J.J.Rhyne, editor, , page 206, (1976).

[O'Handley e Grant 1985] R.C. O'Handley and M.J. Grant. Proc. Conf. on Rapidly Quenched Metals . In S.Steeb and H.Warlimont, editor, , page 1125, (1985).

[Ohnaka *et al* 1981] I. Ohnaka, T. Fukusako, and T. Daido. *J. Japan. Inst. Metall*, **45**,751, (1981).

[Resende *et al* 1987] A.T. Resende, R. Sato Turtelli, and F.P. Missel. *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**,2128, (1987).

[Sato Turtelli e Vinai 1990] R. Sato Turtelli and F. Vinai. *Rev. Bras. Fis.*, **20(3)**,219, (1990).

[Schroeder *et al* 1978] G. Schroeder, R. Schafer, and H. Kronmüller. *Phys. Stat. Sol.*, **(a)50**,475, (1978).

[Severino *et al* 1991] A. M. Severino, A. D. Santos, and F. P. Missel. *Mat. Sci. and Eng.*, **A133**,132, (1991).

[Siemko *et al* 1987] A. Siemko, H.K. Lachowicz, and B. Lisowski. *Acta Phys. Polon.*, **A(72)**,197, (1987).

[Takahashi e Ishio 1977] M. Takahashi and S. Ishio. *Jap. J. Appl. Phys*, **16**,2273, (1977).

[Takahashi e Miyazaki 1978] M. Takahashi and T. Miyazaki. *Jap. J. Appl. Phys*, **17**,361, (1978).

[Wang Qun e Kas-Yuan 1988] Wang Qun and Ho Kas-Yuan. *Mater. Sci. Eng.*, **97**,529, (1988).

[Warren *et al* 1951] B.E. Warren, B.L. Averbach, and B.W. Roberts. *J. Appl. Phys*, **22**,1493, (1951).

[Waseda 1980] Y. Waseda. *The Structure of Non-Crystalline Materials.* McGraw-Hill, New York, (1980).

[Zaveta *et al* 1987] K. Zaveta, K. Jurek, and P. Duhaj. *Czech. J. Phys.*, **B37**,42, (1987).